# This Page Is Inserted by IFW Operations and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
  - ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

## IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning documents will not correct images, please do not report the images to the Image Problem Mailbox.



Europäisches Patentamt

**European Patent Office** 

Office européen des brevets

(1) Publication number:

0 137 963

12

### **EUROPEAN PATENT SPECIFICATION**

(4) Date of publication of patent specification: 28.09.88

(1) Application number: 84109807.2

(2) Date of filing: 17.08.84

(i) Int. Cl.4: C 07 C 49/813, C 07 C 49/84, C 07 C 62/38, C 07 C 79/36,

C 07 C 147/06,

C 07 C 149/273,

C 07 D 317/62, A 01 N 35/06

- (Respondence of the control of the c
- (#) Priority: 31.07.84 US 634408 07.03.84 US 587331 16.09.83 US 532869
- (4) Date of publication of application: 24.04.85 Bulletin 85/17
- (45) Publication of the grant of the patent: 28.09.88 Bulletin 88/39
- Designated Contracting States: AT BE CH DE FR GB IT LI NL SE
- (SI) References cited: EP-A-0 017 195 EP-A-0 090 262 US-A-4 227 919 US-A-4 256 658

78 Proprietor: STAUFFER CHEMICAL COMPANY Westport Connecticut 06881 (US)

(7) Inventor: Michaely, William James 3161 Birmingham Drive Richmond, CA.94806 (US) Inventor: Kraatz, Gary Wayne 1423 Bing Drive San Jose, CA.95129 (US)

(7) Representative: Kraus, Walter, Dr. et al Patentanwälte Kraus, Weisert & Partner Thomas-Wimmer-Ring 15 D-8000 München 22 (DE)

US-A-4 283 348

The file contains technical information submitted after the application was filed and not included in this specification

Note: Within nine months from the publication of the mention of the grant of the European patent, any person may give notice to the European Patent Office of opposition to the European patent granted. Notice of opposition shall be filed in a written reasoned statement. It shall not be deemed to have been filed until the opposition fee has been paid. (Art. 99(1) European patent convention).

#### Description

10

20

This invention relates to 2-(2-substituted benzoyl)-cyclohexane-1,3-diones, a method of controlling undesirable vegetation, and herbicidal composition.

Compounds having the structural formula

wherein x can be an alkyl, n can be 0, 1 or 2, and R<sub>1</sub> can be phenyl or substituted phenyl are described in Japanese patent application 84632—1974 as being intermediates for the preparation of herbocidial compounds of the formula

wherein  $R_1$ , X, and n are as defined above and  $R_2$  is alkyl, alkenyl, or alkynyl. Sprcifically taught herbicidal compounds of this latter group are those where n is 2, X is 5,5-dimethyl,  $R_2$  is allyl and  $R_1$  is phenyl, 4-chlorophenyl or 4-methoxyphenyl.

The precursor intermediates for these three specifically taught compounds have no or almost no herbicidal activity.

In EP—A2—0 090 262 (with priorities from 25.03.82 and 09.02.83, published 05.10.83) herbicidally active 2-(2-substituted benzoyl)-cyclohexane-1,3-diones are described. The compounds described here are new with respect to D1 and were all described in the first basic U.S. application, Ser. No. 532 869 of September 16, 1983, the priority of which is claimed for this case.

In contrast to the compounds known from Japanese patent application 84632—1974, the compounds of this invention have exceptional herbicidal activity. Applicant's compounds must have chlorine, bromine, iodine or alkoxy substitution in the 2-position of the phenyl moiety of their compounds to obtain the exceptional herbicidal activity. Chlorine is the preferred substitution. The exact reason why such a substitution imparts exceptional herbicidal activity to the compound is not fully understood.

The compounds of this invention have the structural formula

45 wherein

40

50

R and R¹ are hydrogen,  $C_1$ — $C_4$  alkyl, R°OC(O)—, where R° is  $C_1$ — $C_4$  alkyl,  $R_2$  is chlorine, bromine, lodine or  $C_1$ — $C_4$  alkoxy, and R³ and R⁴ and R⁵ Independently are (1) hydrogen, (2) halogen, (3)  $C_1$ — $C_4$  alkyl, (4)  $C_1$ — $C_4$  alkoxy, (5) nitro, (6)  $C_1$ — $C_4$  haloalkyl, (7) R°SO<sub>n</sub>— wherein R° is  $C_1$ — $C_4$  alkyl and n is the integer 0, 1 or 2, (8)

wherein R° is C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub> alkyl, or (9) R³ and R⁴ together can form a ring structure with two adjacent carbon atoms of the phenyl ring,

and their salts, with the proviso that compounds having the structural formula

65

wherein

35

R and R1 are hydrogen or C1-C4 alkyl,

R2 is chlorine, bromine or iodine,

R3 is hydrogen or halogen, and

R<sup>4</sup> is hydrogen, C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub> alkyl, C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub> alkoxy, nitro, or trifluoromethyl are excluded.

Preferably R and R¹ are methyl or isopropyl, most preferably R and R¹ are hydrogen. Preferably R² is methoxy, most preferably R² is chlorine, bromine or methoxy. Preferably R³, R⁴ and R⁵ are chlorine or bromine, methyl, methoxy or trifluoromethyl. If R³, R⁴ and R⁵ are R⁵SO<sub>n</sub>—, R⁵ is preferably methyl, and n is preferably 2.

Most preferably, R³ is chlorine, hydrogen, dimethylamino or methoxy. Preferably R⁴ is hydrogen, chlorine, nitro, SO₂CH₃, SO₂N(CH₃)₂ or CF₃. Preferably R⁵ is hydrogen.

The most preferred compound is the compound having the above-mentioned formula wherein R is hydrogen, R<sup>1</sup> Is hydrogen, R<sup>2</sup> Is chlorine, R<sup>3</sup> is hydrogen, R<sup>4</sup> is 4-CH<sub>3</sub>SO<sub>2</sub> and R<sup>5</sup> is hydrogen and its salts.

This invention also relates to a method controlling undesirable vegetation comprising applying to the area where control is desired, a herbically effective amount of a compound mentioned above.

The compounds of this invention can have the following four structural formulae because of tautomerism:

wherein R, R1, R2, R3, R4 and R5 are as defined above.

The circled proton on each oif the four tautomers is reasonably labile. These protons are acidic and can be removed by any base to give a salt having an anion of the following four resonance forms:

wherein R, R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup>, R<sup>4</sup> and R<sup>5</sup> are as defined above.

Examples of catlons of these bases are inorganic cations such as alkali metals, e.g. lithium, sodium, and potassium alkaline earth metals, e.g. barium, magnesium, calcium and strontium or organic cations such as substituted ammonium, sulfonium or phosphonium wherein the substituted is an aliphatic or aromatic group.

The term "aliphatic group" is used herein in a broad sense to cover a large class of organic groups characterized by being derived from (1) an acylic (open-chain structure) of the paraffin, olefin and acetylene hydrocarbon series and their derivatives or (2) alicyclic compounds. The aliphatic group can have from 1 to 10 carbon atoms.

15

20

25

30

45

50

#### 0 137 963

The term "aromatic group" is used herein in a broad sense to distinguish from the aliphatic group and includes a group derived from (1) compounds having 6 to 20 carbon atoms and characterized by the presence of at least one benzene ring, including monocyclic, bicyclic and polycyclic hydrocarbons and their derivatives and (2) heterocyclic compounds having 5 to 19 carbon atoms which are similar in structure and are characterized by having an unsaturated ring structure containing at least one atom other than carbon such as nitrogen, sulfur and oxygen and derivatives of these heterocyclic compounds.

In the above description of the compounds of this invention alkyl and alkoxy include both straight and branched configurations; for example, methy, ethyl, n-propyl, isopropyl, n-butyl, sec-butyl, isobutyl, and tert-butyl.

The compounds of this invention and their salts are active herbicides of a general type. That is, they are herbicidally effective against a wide range of plant species. The method of controlling undesirable vegetation of the present invention comprises applying a herbicidally effective amount of the above-described compounds to the area where control is desired.

The compounds of the present invention can be prepared by the following general method.

Generally, mole amounts of the dione and substituted benzoyl cyanide are used, along with a slight mole excess of zinc chloride. The two reactants and the zinc chloride are combined in a solvent such as methylene chloride. A slight mole excess of triethylamine is slowly added to the reaction mixture with cooling. The mixture is stirred at room temperature for 5 hours.

The reaction product is worked up by conventional techniques.

The above-described substituted benzoyl cyanide can be prepared according to the teaching of T. S. Oakwood and C. A. Weisgerber, *Organic Synthesis Collected*, Vol. III, pp. 122 (1955).

The following example teaches the synthesis of a representative compound of this invention.

#### Example 1

2-(2,4-Dichlorobenzoyl)-cyclohexane-1,3-dione

1,3-Cyclohexanedione [11.2 grams (g), 0.1 mole] 20.0 g (0.1 mole) 2,4-dichlorobenzoyl cyanide and 13.6 g (0.11 mole) anhydrous, powdered zinc chloride were combined in 100 milliliters (ml) methylene chloride. Triethylamine (10.1 g, 0.12 mole) was slowly added with cooling. The reaction mixture was stirred at room temperature for 5 hours and then poured into 2N hydrochloric acid. The aqueous phase was discarded and the organic phase was washed with 150 ml 5% Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> four times. The aqueous washings were combined and acidified with HCI, extracted with methylene chloride, dried and concentrated to yield 25.3 g of crude product. The crude product was dissolved in ether and stirred with 250 ml of 5% copper (II) acetate. The resulting copper salt was filtered, washed with ether and stirred with 6N hydrochloric acid to destroy the salt. The extract was washed with ether to yield 22.15 grams of the desired product m.p. 138—140°C (77.7% yield). The structure was confirmed by instrumental analysis.

The following is a table of certain selected compounds that are preparable according to the procedure described hereto. Compound numbers are assigned to each compound and are used throughout the remainder of the application.

				•••			
Compound Number	R	<u>R</u> 1	_R <sup>2</sup> _	<sub>R</sub> 3	R4	R5	ND <sup>30</sup>
1	CH <sub>3</sub>	CH3	CH3O	H	Н	H	104-108
2	H	H	a	H	(a)	Ħ	
3	H	H	Br	H	H	(b)	
4	H	Ħ	CH3O	3-CH	P OF	H	75 <b>-</b> 79
5	H	Н	CH3O	H	H	5-CH <sub>3</sub> O	89 <del>-9</del> 2
6	Н	H	Br	H	4-CH <sub>3</sub> O	5-CH <sub>3</sub> O	92 <del>-9</del> 6
7	H	H	Br	Ħ	(4)OCH	20(5)	63-68
8	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	Cl	3 <b>-</b> Cl	4-C1	5-C1	137-139
9	Н	Ħ	Cl	3-C1	4-Cl	5-C1	106-110
10	ОН СН(СН <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> О-С-	н	cı	н	4-C1	н	
11	СН30-С-	Н	CI.	H	4-C1	н	
12	sodium salt of	Compo	ind No.	23			85 <del>-9</del> 4
. 13	isopropylamine	salt o	of Compo	ound No	. 23		160-165
14	triethylamine s	82 <del>-8</del> 5					
15 .	potassium salt	of Car	f brucq	<b>b.</b> 23			107-106
16	triethanolamon	uium sa	lt of (		d No. 39		
17	scdium salt of	Сатро	and No.	43			60-63

0 137 963 <u>TABLE I</u> (continued)

5	Compound Number	R	<u>R</u> l	R <sup>2</sup>	R3	R <sup>4</sup>	<sub>R</sub> 5	N <sub>D</sub> 30 or m.p. °C
	18	Ħ	H	cı	н	4-CH3502-	H	
10	19	CH <sub>3</sub>	СНЗ	CI	Н	4-CH3SO2-	Ħ	
70	20	H	Н	Cl	3-CH <sub>3</sub>	4-Cl	H	,
	21	H	H	Cl	H	4-C2H5SO2-	H	98-100
15	22	H	H	Cl	3-C1	4-C2H5SO2-	H	98-109
	23	H	H	СĪ	H	4-C3H7SO2-	H	semi-solid
	24	H	Ħ	a	3-0CH <sub>3</sub>	4-CH3SO2-	н	48-59
20	25	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CI	H	4-n-C3H7SO2-	H	semi-solid
20	26	Ħ	H	CI	3-C1	4-n-C3H7SO2-	Н	145-148,5
	27	H	H	CI	3-C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> S	4-C2H5SO2-	H	oil
	28	CH3	CH3	Cl	H	4-C2H5SO2-	Н	103-108
25	29	CH3	CH3	CI	3-C1	4-C2H5SO2-	Ħ	108-111
	30	i-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	H	CI	H	4-C2H5SO2-	H	prown gum
	31	H	H	CI	3-C1	4-CH3SO2-	H	145-154
30	32	i-C3H7	H	Cl	3-C1	4-CH3SO2-	H	
	33	H	H	Br	H	4-CH <sub>3</sub> SO <sub>2</sub> .	H	brown gum
	34	H	H	CI	H	4-i-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> SO <sub>2</sub> -	H	
35	35	H	H	Cl	H	4-CH <sub>3</sub> S-	H	70-77
	36	H	H	CI	3-Cl	4-CH3S-	н	
	37	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	Cl	3-C1	4-C2H5SO2-	Н	120-123
40	38	H	н .	Cl	H	4-n-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> SO <sub>2</sub> -	н	
	39	CH <sub>3</sub>	CH3	CI	H	4-n-C4H9SO2-	Н	
	40	Ħ	H	CI	3-0C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> -	4-CH3SO2-	H	semi-solid
45	41	Н	H	CI	3-0CH <sub>3</sub>	4-n-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> SO <sub>2</sub> -	H	golden gum
	42	СН3	CH3	CI CI	H	4-i-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> SO <sub>2</sub> -	Н	125-128

\* = Prepared in example.

Herbicidal Screening Tests

As previously mentioned, the herein described compounds produced in the above-described manner are phytotoxic compounds which are useful and valuable in cotrolling various plant species. Selected compounds of this invention were tested as herbicides in the following manner.

Pre-emergence herbicide test. On the day preceding treatment, seeds of eight different weed species are planted in loamy sand soil in individual rows using one species per row across the width of a flat. The seeds used are green foxtail (FT) (Setaria viridis), watergrass (WG) Echinochloa crusgalli), wild oat (WO) (Avena fatua), annual morningglory (AMG) (Ipomoea lacunosa), velvetleaf (VL) Abutilon theophrasti),

15

#### 0 137 963

Indian mustard (MD) (Brassica juncea), redroot pigweed (PW) Amaranthus retroflexus) or curly dock (CD) (Rumex crispus), and yellow nutsedge (YNG) (Cyperus esculentus). Ample seeds are planted to give about 20 to 40 seedlings per row, after emergence, depending upon the size of the plants.

Using an analytical balance, 600 milligrams (mk) of the compound to be tested are weighed out on a piece of glassine weighing paper. The paper and compound are placed in a 60 milliter (ml) wide-mouth clear bottle and dissolved in 45 ml of acetone or substituted solvent. Eighteen ml of this solution are transferred to a 60-ml wide-mouth clear bottle and diluted with 22 ml of a water and acetone mixture (19:1) containing enough polyoxyethylene sorbitan monolaurate emulsifier to give a final solution of 0.5% (v/v). The solution is then sprayed on a seeded flat on a linear spray table calibrated to deliver 80 gallons per acre (748 L/ha). The application rate is 4 lb/acre (4.48 Kg/ha).

After treatment, the flats are placed in the greenhouse at a temperature of 70 to 80°F and watered by sprinkling. Two weeks after treatment, the degree of injury or control is determined by comparison with untreated check plants of the same age. The injury rating from 0 to 100% is recorded for each species as percent control with 0% representing no injury and 100% representing complete control.

The results of the tests are shown in the following Table II.

TABLE II

Pre-Emergence Berbicidal Activity
Application Rate — 4.48 kg/ha

20	Ompd.	pd. Application Rate — 4.48 kg/ha									
	No.	FT	WG	<u>wo</u>	AMG	<u>VL</u>	MD ·	<u>PW</u>	CD	YNG	
	1	40	15	0	0	0	10		0	30	
25	2	40	80	10	20	60	50		30	75	
	3	65	75	0	65	100	95		75	55	
	4	100	95	55	10	80	<i>7</i> 5		85	95	
30	5	20	20	20	10	40	40		50	20	
	6	75	95	20	20	100	95		75	10	
	7	90	85	20	0	100	85		75	30	
35	8	0	0	0	20	100	100		100	0	
	9	40	0	0	20	100	60		90	-	
	10	80	10	0	0	0	0		0	90	
40	11	60	0	0	0	0	0		0	90	
40	12	90	100	0	60	100	100		100	95	
	13	100	100	0	60	100	100		100	100	
	14	20	60	0	100	100	100		100	20	
45	15	60	70	20	100	100	100		100	60	
	16	60	0	0	0	0	0		0	40	
	17	100	100	50	10	60	20		90	100	
50	18	100	100	90	100	100	100		85	100	
	19	90	1 00	60	100	100	100		90	100	
	20	100	100	90	100	100	100		85	100	
55	21	90	95	0	20	20	40		40	100	
	22	95	100	85	75	100	100		90	98	
	23	95	100	50	50	100	100		90	98	
60	24	100	100	75	100	100	100		95	95	
	25	100	100	95	75	100	100		100	80	
	26	100	100	40	65	100	100		100	95	
65	27	100	100	98	100	100	100		100	90	

30

#### 0 137 963

# TABLE II (continued)

	Ompd.									
5	No.	FT	WG	<u>wo</u>	AMG	<u>vr</u>	MD	<u>PW</u>	<u>CD</u>	<u>YNG</u>
	28	100	100	90	100	100	100		100	90
	29	100	100	75	100	100	100		100	98
36 100 100	100	60	80	100	100		75	90		
	37	100	100	70	80	100	100		80	100
	38	70	100	0	50	100	100		100	80
15	39	40	90	25	10	100	100		100	10
	40	100	100	90	100	100	100		85	-
	41	100	100	80	100	100	100		90	-
20										

<sup>- =</sup> Species did not germinate for some reason.

The results of the post-emergence herbicide test are reported in Table III.

# TABLE III Post-Emergence Merbicidal Activity Application Rate — 4.48 kg/ha

35	Cnpd.	Appricación Race — 4.46 kg/na									
	No.	FT	WG	<u>wo</u>	AMG	<u>VL</u>	MD	PW CD	YNG		
	1	45	30	0	40	70	65	0	45		
40	2	75	80	30	65	50	45	85	85		
	3	<b>7</b> 5	<b>60</b> .	60	75	100	70	80	25		
	4	85	85	85	75	85	65	65	85		
45	5	75	50	20	10	0	0	20	40		
	6	60	60	20	40	40	70	100	40		
	7	60	25	20	40	90	65	20	40		
50	8	0	-0	0	20	20	20	0	0		
	9	0	0	0	30	40	20	80	0		
	10	40	40	20	0	0	0	5	80		
55	11	90	70	40	20	60	80	.20	65		
	12	80	85	0	60	90	90	100	80		
	13	90	90	10	100	100	100	100	90		
60	14	80	100	0	60	100	100	100	100		
	15	100	100	0	60	100	100	100	100		
	16	40	40	20	10	10	10	. 90	40		
65	17	40	40	40	80	100	100	60	60		

A blank indicates that the weed was not tested.

Post-Emergence Herbicide Test: This test is conducted in an Identical manner to the testing procedure for the pre-emergence herbicide test, except the seeds of the eight different weed species are planted 0-12 days before treatment. Also, watering of the treated flats is confined to the soil surface and not to the follage of the sprouted plants.

# TABLE III (continued)

5	Cmpd.	FT	<u>wg</u>	<u>œ</u>	AMG .	<u>VL</u>	MD	PW	CD	YNG
	18	80	80	95	100	100	100		100	90
	19	40	40	40	60	60	60		80	90
10	20	90	60	80	95	100	100		100	90
	21	60	70	10	70	10	10		20	80
	22	100	100	90	100	-	100		100	50
15	23	100	100	100	100	-	100		100	70
	24	90	85	90	85	-	100		100	80
	25	100	85	100	75	100	100		100	35
20	26	70	80	20	100	100	100		35	40
	27	75	75	90	70	90	70		40	40
	28	100	70	100	55	90	95		100	40
25	29	100	75	100	90	95	95		100	20
	36	100	100	95	100	100	100		55	30
,	37	100	95	<b>7</b> 5	100	100	100		85	40
30	38	100	100	30	95	80	100		80	40
	3 <b>9</b>	80	80	75	75	100	95		95	25
	40	80	80	80	90	90	80		90	80
35	41	80	85	75	85	80	95		100	. <b>50</b>

Pre-Emergence Multi-Weed Herbicide Test

Several compounds were evaluated at an application of 2 lb/acre (2.24 kg/ha) for pre-emergence activity against a larger number of weed species.

The process was generally similar to the pre-emergence herbicide test described above except except that only 300 milligrams of test compound were weighed out and the application rate was 40 gallons per acre.

Redroot pigweed (PW) and curly dock (CD) were elimiated in this test and the following weed species were added.

50	Grasses: downybrame annual ryegrass rox-orange sorghum hemp sesbania	Bramus tectorum Lolium multiflorum Sorghum bicolor Sesbania exaltata Solanum sp	(DB) (ARG) (SHC) (SESB)
	nightsaade	Solanum sp.	(SP)
	cocklebur	Xattiium sn	(CB)

The results of the test are shown in Table IV.

65

55

0 137 963

## TABLE IV Pre-Emergence Multi-weed Herbicide Test

5	Ompal No.		FT	ARG	WG	SRC	<u>wo</u>	BSG	AMG	SESB	<u>vr</u>	<u>SP</u>	MD	YNS	<u>CB</u>
	30	20	90	25	98	80	60	90	45	90	45	20	85	85	15
10	31	65	98	98	100	100	60	95	100	100	100	80	100	95	100
	32	65	100	70	100	100	65	95	100	95	70	65	100	90	-
	33	98	100	100	100	100	90	98	90	100	90	60	100	95	80
	34	60	20	100	100	100	80	95	35	40	100	20	90	100	40
15	35	100	100	100	100	100	100	100	100	90	100	60	100	100	20

The compounds of the present invention are useful as herbicides, especially as pre-emergence herbicides, and can be applied in a variety of ways at various concentrations. In practise, the compounds herein defined are formulated into herbicidal compositions, by admixture, in herbicidally effective amounts, with the adjuvants and carriers normally employed for facilitating the dispersion of active ingredients for agricultural applications, recognizing the fact that the formulation and mode of application of a toxicant may affect the activity of the materials in a given application. Thus, these active herbicidal compounds may be formulated as granules of relatively large particle size, as wettable powders, as emulsifiable concentrates, as powdery dusts, as solutions or as any of several other known types of formulations, depending upon the desired mode of application. Preferred formulations for pre-emergence herbicidal applications are wettable powders, emulsifiable concentrates and granules. These formulations may contain as little as about 0.5% to as much as about 95% or more by weight of active Ingredient. A herbicidally effective amount depends upon the nature of the seeds or plants to be controlled and the rate of application varies from about 0.05 to approximately 25 pounds per acre, prefeably from about 0.1 to about 10 pounds per acre.

Wettable powders are in the form of finely divided particles which disperse readily in water or other dispersants. The wettable powder is ultimately applied to the soil either as a dry dust or as a dispersion in water or other liquid. Typical carriers for wettable powders include fuller's earth, kaolin clay, silicas and other readily wet organic or inorganic diluents. Wettable powders normally arew prepared to contain about 5% to about 95% of the active ingredient and usually also contain a small amount of wetting, dispersing, or emulsifying agent to facilitate wetting and dispersion.

Emulsifiable concentrates are homogeneous liquid compositions which are dispersible in water or other dispersant, and may consist entirely of the active compound with a liquid or solid emulsifying agent, or may also contain a liquid carrier, such as xylene, heavy aromatic naphthal, isophorone and other non-volatile organic solvents. For herbicidal application, these concentrates are dispersed in water or other liquid carrier and normally applied as a spray to the area to be treated. The percentage by weight of the essential active ingredient may vary according to the manner in which the composition is to be applied, but in general comprises about 0.5% to 95% of active ingredient by weight of the herbicidal composition.

Granular formulations wherein the toxicant is carried on relatively coarse particles, are usually applied without dilution to the area in which suppression of vegetation is desired. Typical carriers for granular formulations include sand, fuller's earth, bentonite clays, vermiculite, perlite and other organic or inorganic materials which absorb or which may be coated with the toxicant. Granular formulations normally are prepared to contain about 5% to about 25% of active ingredients which may include srface-active agents such heavy aromatic naphthas, kerosene or other petroleum fractions, or vegetable oils; and/or stickers such as destrins, glue or synthetic resins.

Typical wetting, dispersing or emulsifying agents used in agricultural formulations include, for example, the alkyl and alkylaryl sulfonates and sulfastes and their sodium salts; polyhydric alcohols; and other types of surface-active agents, many of which are available in commerce. The surface-active agent, when used, normally comprises from 0.1% to 15% by weight of the herbicidal composition.

Dusts, which are free-flowing admixtures of the active ingredients with finely divided solids such as talc, clays, flours and other organic and inorganic solids which act as dispersants and carriers for the toxicant, are useful formulations for soil-incorporating application.

Pastes, which are homogeneous suspensions of a finely divided solid toxicant in a liquid carrier such as water or oil, are employed for specific purposes. These formulations normally contain about 5% to about 95% of active ingredients by weight, and may also contain small amounts of a wetting, dispersing or emulsifying agent to facilitate dispersion. For application, the pastes are normally diluted and applied as a spray to the area to be affected.

Other useful formulations for herbicidal applications include simple solutions of the active ingredient in a dispersant in which it is completely soluble at the desired concentration, such as acetone, alkylated naphthalenes, xylene and other organic solvents. Pressurized sprays typically aerosols, wherein the active ingredient is dispersed in finely-divided form as a result of vaporization of low boiling dispersant solvent carrier, such as the Freons, may also be used.

The phytotoxic compositions of this invention are applied to the plants in the conventional manner. Thus, the dust and liquid compositions can be applied to the plant by the use of power-dusters, boom and hand sprayers and spray dusters. The compositions can also be applied from airplanes as a dust or spray because they are effective in very low dosages. In order to modify or control growth of germinating seeds or emerging seedlings, as a typical example, the dust and liquid compositions are applied to the soil according to conventional methods and are distributed in the soil to a depth of at least ½ inch below the soil surface. It is not necessary that the phytotoxic compositions be admixed with the soil particles since these compositions can also be applied merely by spraying or sprinkling the surface of the soil. The phytotoxic compositions of this invention can also be applied by addition to irrigation water supplied to the field to be treated. This method of application permits the penetration of the compositions into the soil as the water is absorbed therein. Dust compositions, granular compositions or liquid formulations applied to the surface if the soil can be distributed below the surface of the soil by conventional means such as discing, dragging or mixing operations.

The phytotoxic compositions of this invention can also contain other additaments, for example, fertilizers and other herbicides, pesticides and the like, used as adjuvants or in combination with any of the above described adjuvants. Other phytotoxic compounds useful in combination with the above-described compounds include, for example, anilides such as 2-benzothiazole-2-yloxy-N-methyl acetanllide, 2-chloro-2',6'-dimethyl-N-(n-propylethyl) acetanilide, 2-chloro-2',6'-diethyl-N-butoxymethyl) acetanilide; 2,4dichlorophenoxyacetic acids, 2,4,5-trichlorophenoxyacetic acid, 2-methyl-4-chlorophenoxyacetic acid and the salts, esters and amides thereof; triazine derivatives, such as 2,4-bis(methoxypropylamino)-6methylthio-s-triazine, 2-chloro-4-ethylamino-6-isopropylamino-s-triazine, and 2-ethylamino-4-isopropylamino-6-methyl-mercapto-s-triazine; urea derivatives, such as 3-(3,5-dichlorophenyl)-1,1-dimethylurea and 3-(p-chlorophenyl)-1,1-dimethylurea; and acetamides such as N,N-diallyl-α-chloroacetamide, and the like; benzoic acids such as 3-amino-2,5-dichchlorobenzoic acid; thio-carbamates such as S-(1,1-dimethylbenzyl)-piperdene-1-carbothiaote, 3-(4-chlorophenyl)-methyl diethylcarbothioate, ethyl-1-hexahydro-1,4-S-ethyl-hexahydro-1H-azepine-1-carbothioate, S-propyl N,N-dipropylthloazepine-1-carbothioate, carbamate, S-ethyl N,N-dipropylthiocarbamate, S-ethyl cyclohexylethylthiocarbamate, S-ethyl hexahydro-1H-azepine-1-carbothioate and the like; anilines such as 4-(methylsulfonyl)-2,6-dinitro-N,N-substituted aniline, 4-trifluoromethyl-2,6-dinitro-N,N-di-n-propyl anlline, 4-trifluoromethyl-2,6-dinitro-N-ethyl-N-butyl aniline, 2-[4-(2,4-dichlorophenoxy)phenoxypropanoic acid, 2-[1-(ethoxyimino)-butyl]-5-[2-ethylthio)propyl]-3-hydroxy-2-cyclohexane-2-cycloxyhexene-1-one, (±)-butyl-2-[4-[5-trifluoromethyl)-2-pyridinyl)oxylphenoxy]propanate, sodium 5-[2-chloro-4-(trifluoromethyl)phenoxy]-2-nitrobenzoate, 3-isopropyl-1H-2,1,3-benzothladiazine-4(3H)-one-2,2-dioxide, and 4-amino-6-tert-butyl-3-(methylthio)-s-triazin-5(4H)-one or (4-amino-6(1,1-dimethylethyl)-3-(methylthio)-1,2,4-triazin-5(4H)-one) and S-(0,0-diisopropyl)-benzene sulfonamide. Fertilizers useful in combination with the active ingredients include, for example, ammonium nitrate, urea and superphosphate. Other useful additaments include materials in which plant organisms take root and grow such as compost, manure, humus, sand, and the like.

#### Claims for the Contracting States: BE CH DE FR GB IT LI NL SE

A compound having the structural formula

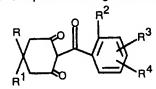
wherein

R and R¹ are hydrogen,  $C_1$ — $C_4$  alkyl, RªOC(O)—, where Rª is  $C_1$ — $C_4$  alkyl, R₂ is chlorine, bromine, iodine or  $C_1$ — $C_4$  alkoxy, and R³ and R⁴ and R⁵ independently are (1) hydrogen, (2) halogen, (3)  $C_1$ — $C_4$  alkyl, (4)  $C_1$ — $C_4$  alkoxy, (5) nitro, (6)  $C_1$ — $C_4$  haloalkyl, (7) R⁵SO<sub>n</sub>— wherein R⁵ is  $C_1$ — $C_4$  alkyl and n is the integer 0, 1 or 2, (8)

65

45

wherein R° is C1-C4 alkyl, or (9) R3 and R4 together can form a ring structure with two adjacent carbon atoms of the phenyl ring, and their salts, with the proviso that compounds having the structural formula



wherein

5

10

R and R<sup>1</sup> are hydrogen or C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub> alkyl,

R2 is chlorine, bromine or lodine,

R3 is hydrogen or halogen, and

R4 is hydrogen, halogen C1-C4 alkyl, C1-C4 alkoxy, nitro, or trifluoromethyl

2. The compounds of Claim 1 wherein R and R¹ are hydrogen or C₁—C₄ alkyl; R² is chlorine, bromine, iodine or C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub> alkoxy; R<sup>3</sup> and R<sup>4</sup> independently are hydrogen, halogen, C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub> alkoxy, nitro, C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub> haloalkyl, RoSOn wherein Rois C1-C4 alkyl; and n is the integer 0, 1 or 2; RoC(O)NH- wherein Rois C1-C4 alkyl; R5 is hydrogen and their salts.

3. The compounds of Claim 1 wherein R and R1 are hydrogen or methyl, R2 is chlorine, bromine or methoxy; R3 is hydrogen, chlorine, dimethylamino or methoxy; R4 is hydrogen, chlorine, nitro, RbSOn wherein R<sup>b</sup> is C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub> alkyl and n is 0 or 2, SO<sub>2</sub>N(CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub> or CF<sub>3</sub>; and R<sup>5</sup> is hydrogen, and their salts.

4. The compounds of Claim 3 wherein R<sup>3</sup> is substituted at the 3-position, R<sup>4</sup> is substituted at the 4-

25 position and R<sup>5</sup> is substituted at the 5- or 6-position and their salts.

5. The compounds of Claim 3 wherein R and R<sub>1</sub> are hydrogen; R<sup>2</sup> is chlorine or methoxy; R<sup>3</sup> ishydrogen, 3-chlorine, 3-methoxy, 3-ethoxy, 3-n-propoxy, 4-methoxy or 3-dimethyl-amino and R<sup>4</sup> is 4-chlorine, 4-bromine, 4-CH<sub>3</sub>SO<sub>2</sub>—, 4C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>SO<sub>2</sub>—, or 4-CH<sub>3</sub>SO<sub>2</sub>—; and R<sup>5</sup> is hydrogen and their salts.

6. The salts of the compounds of Claim 2 wherein R<sup>2</sup> is chlorine.

7. The salts of the compounds of Claim 1 wherein R is methyl, R1 is methyl, R2 is chlorine, R3 is hydrogen, R4 is hydrogen and R5 is 6-chlorine.

8. The salts of the compounds of Claim 1 wherein R is hydrogen, R1 is hydrogen, R2 is chlorine, R3 is hydrogen, R4 is hydrogen, R5 is 6-chlorine.

9. The salts of the compounds of Claim 1 wherein R is hydrogen R1 is hydrogen, R2 is chlorine, R3 is 35 hydogen, R4 is 4-chlorine and R5 is hydrogen.

10. The salts of the compounds of Claim 1 wherein R is hydrogen, R1 is hydrogen R2 is chlorine, R3 is 3chlorine and R4 is hydrogen and R5 is 6-chlorine.

11. The salts of the compounds of Claim 1 wherein R is hydrogen, R<sup>1</sup> is hydrogen, R<sup>2</sup> is chlorine, R<sup>3</sup> is hydrogen, R4 is hydrogen and R5 is 5-trifluoromethyl.

12. The salts of the compounds of Claim 1 wherein R is hydrogen, R1 is hydrogen, R2 is chlorine, R3 is 3chlorine, R4 is 4-chlorine and R5 is hydrogen.

13. The salts of the compounds of Claim 1 wherein R is hydrogen, R1 is hydrogen, R2 is chlorine, R3 is 3chlorine, R4 is 4-methoxy and R5 is hydrogen.

14. The salts of the compounds of Claim 1 wherein R is hydrogen, R<sup>1</sup> is hydrogen, R<sup>2</sup> is chlorine, R<sup>3</sup> Is 45 hydrogen, R4 is 4-bromine and R5 is hydrogen.

15. The compound of Claim 1 wherein  $\bar{R}$  is hydrogen,  $R^1$  is hydrogen,  $R^2$  is chlorine,  $R^3$  is 3-chlorine,  $R^4$ is  $nC_3H_7SO_2$ — and  $R^6$  is hydrogen and its salts.

16. The salts of the compounds of Claim 1 wherein R is hydrogen, R¹ is hydrogen, R² is chlorine, R³ is hydrogen, R4 is 4-chlorine and R5 is hydrogen.

17. The compound of Claim 1 wherein R is isopropyl, R1 is hydrogen, R2 is chlorine, R3 is 3-CH3, R4 is 4-CH<sub>3</sub>SO<sub>2</sub> and R<sup>6</sup> is hydrogen and its salts.

18. The compound of Claim 1 wherein R is hydrogen, R1 is hydrogen, R2 is chlorine, R3 is hydrogen, R4 4-CH<sub>3</sub>SO<sub>2</sub> and R<sup>5</sup> is hydrogen and its salts.

19. The salts according to Claim 12 namely the sodium, isopropylamine, triethylamine and potassium 55 salts.

20. The method of controlling undesiable vegetation comprising applying to the area where control is desired, a herbicidally effective amount of a compound having the formula

65

60

#### 0.137 963

wherein

10

15

20

25

40

50

50

R and R¹ are hydrogen, C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub> alkyl, R°OC(O)—, where R° is C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub> alkyl, R<sub>2</sub> is chlorine, bromine, iodine or C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub> alkoxy, and R³ and R⁴ and R⁵ independently are (1) hydrogen, (2) halogen, (3) C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub> alkyl, (4) C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub> alkoxy, (5) nitro, (6) C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub> haloalkyl, (7) R⁵SO<sub>n</sub>— wherein R⁵ is C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub> alkyl and n is the integer 0, 1 or 2, (8)

wherein  $R^c$  is  $C_1$ — $C_4$  alkyl, or (9)  $R^3$  and  $R^4$  together can form a ring structure with two adjacent carbon atoms of the phenyl ring, or one of its salts with the proviso that compounds having the structural formula

wherein

R and R1 are hydrogen or C1-C4 alkyl,

R<sup>2</sup> is chlorine, bromine or iodine,

R3 is hydrogen or halogen, and

 $R^4$  is hydrogen,  $C_1$ — $C_4$  alkyl,  $C_1$ — $C_4$  alkoxy, nitro, or trifluoromethyl are excluded.

21. The method of Claim 20 wherein R and R¹ are hydrogen or  $C_1$ — $C_4$  alkyl; R² is chlorine, bromine, lodine or  $C_1$ — $C_4$  alkoxy, R³ and R⁴ independently are hydrogen, halogen,  $C_1$ — $C_4$  alkyl,  $C_1$ — $C_4$  alkoxy, nitro,  $C_1$ — $C_4$  haloalkyl, R⁵SO<sub>n</sub> wherein R⁵ is  $C_1$ — $C_4$  alkyl; and n is the integer 0, 1 or 2; R°C(O)NH— wherein R° is  $C_1$ — $C_4$  alkyl; R⁵ is hydrogen; and their salts.

22. The method of Claim 20 wherein R and R¹ are hydrogen or methyl; R² is chlorine, bromine or methoxy; R³ is hydrogen, chlorine or methoxy; R⁴ is hydrogen, chlorine nitro, R⁵SO<sub>n</sub> wherein R⁵ is C₁—C₄ alkyl and n is 0 or 2, SO₂N(CH₃)₂ or CF₃; and R⁵ is hydrogen and their salts.

23. The method of Claim 22 wherein R<sup>3</sup> is substituted at the 3-position, R<sup>4</sup> is substituted at the 4-position and R<sup>5</sup> is substituted at the 5- or 6-position and their salts.

24. The method of Claim 22 wherein R and R<sup>1</sup> are hydrogen, R<sup>2</sup> is chlorine or methoxy; R<sup>3</sup> is hydrogen, 3-chlorine, 3-methoxy, 3-ethoxy, 3-n-propoxy, 4-methoxy or 3-dimethylamino; R<sup>4</sup> is 4-chlorine, 4-bromine, 4-CH<sub>3</sub>SO<sub>2</sub>, 4C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>SO— or 4-CH<sub>3</sub>SO<sub>2</sub>; and R<sup>5</sup> is hydrogen and their salts.

25. The method of Claim 24 wherein R2 is chlorine and their salts.

26. The method of Claim 20 wherein a salt of a compound wherein R is methyl, R<sup>1</sup> is methyl, R<sup>2</sup> is chlorine, R<sup>3</sup> is hydrogen, and R<sup>5</sup> is 6-chlorine is applied.

27. The method of Claim 20 wherein a salt of a compound wherein R is hydrogen, R<sup>1</sup> is hydrogen, R<sup>2</sup> is chlorine, R<sup>3</sup> is hydrogen, R<sup>4</sup> is hydrogen, R<sup>5</sup> is 6-chlorine is applied.

28. The method of Claim 20 wherein a salt of a compound wherein R is hydrogen, R<sup>1</sup> is hydrogen, R<sup>2</sup> is chlorine, R<sup>3</sup> is hydrogen, R<sup>4</sup> is 4-chlorine and R<sup>5</sup> is hydrogen is applied.

29. The method of Claim 20 wherein a salt of a compound wherein R is hydrogen, R<sup>1</sup> is hydrogen, R<sup>2</sup> is chlorine, R<sup>3</sup> is 3-chlorine and R<sup>4</sup> is hydrogen and R<sup>5</sup> is 6-chlorine is applied.

30. The method of Claim 20 wherein a salt of a compound wherein R is hydrogen, R<sup>1</sup> is hydrogen, R<sup>2</sup> is chlorine, R<sup>3</sup> is hydrogen, R<sup>4</sup> is hydrogen and R<sup>5</sup> is 5-trifluoromethyl is applied.

31. The method of Claim 20 wherein a salt of a compound wherein R is hydrogen, R<sup>1</sup> is hydrogen, R<sup>2</sup> is chlorine, R<sup>3</sup> is 3-chlorine, R<sup>4</sup> is 4-chlorine and R<sup>5</sup> is hydrogen is applied.

32. The method of Claim 20 wherein a salt of a compound wherein R is hydrogen, R<sup>1</sup> is hydrogen, R<sup>2</sup> is chlorine, R<sup>3</sup> is 3-chlorine, R<sup>4</sup> is 4-methoxy and R<sup>5</sup> is hydrogen is applied.

33. The method of Claim 20 wherein a salt of a compound wherein R is hydrogen, R<sup>1</sup> is hydrogen, R<sup>2</sup> is chlorine, R<sup>3</sup> is hydrogen, R<sup>4</sup> is 4-bromine and R<sup>5</sup> is hydrogen is applied.

34. The method of Claim 20 wherein R is hydrogen, R<sup>1</sup> is hydrogen, R<sup>2</sup> is chlorine, R<sup>3</sup> is 3-chlorine, R<sup>4</sup> is nC<sub>3</sub>H<sub>7</sub>SO<sub>2</sub>— and R<sup>5</sup> is hydrogen and its salts.

35. The method of Claim 20 wherein R is isopropyl, R<sup>1</sup> is hydrogen, R<sup>2</sup> is chlorine, R<sup>3</sup> is hydrogen, R<sup>4</sup> is 4-chlorine and R<sup>5</sup> is hydrogen and its salts.

36. The method of Claim 20 wherein R is hydrogen, R<sup>1</sup> is hydrogen, R<sup>2</sup> is chlorine, R<sup>3</sup> is 3—CH<sub>3</sub>O, R<sup>4</sup> is 4-CH<sub>3</sub>SO<sub>2</sub>, chlorine and R<sup>5</sup> is hydrogen and its salts.

37. The method of Claim 20 wherein R is hydrogen, R<sup>1</sup> is hydrogen, R<sup>2</sup> is chlorine, R<sup>3</sup> is hydrogen, R<sup>4</sup> is 4-CH<sub>3</sub>SO<sub>2</sub> and R<sup>5</sup> is hydrogen and its salts.

38. The method of Claim 20 wherein the salts are the sodium, isopropylamine, triethylamine and potassium salts.

39. The compound of Claim 1 wherein R is hydrogen, R¹ is hydrogen, R² is chlorine, R³ is 3—C₂H₅S, R⁴ is 4—C₂H₅SO₂ and R⁵ is hydrogen and its salts.

40. The compound of Claim 1 wherein R is hydrogen, R<sup>1</sup> is hydrogen, R<sup>2</sup> is chlorine, R<sup>3</sup> is 3-methoxy, R<sup>4</sup>

is  $4-C_2H_5SO_2$  and  $R^5$  is hydrogen and its salts.

41. The compound of Claim 1 wherein R is hydrogen, R<sup>1</sup> is hydrogen, R<sup>2</sup> is chlorine, R<sup>3</sup> is 3-chlorine, R<sup>4</sup> is 4-n-C<sub>3</sub>H<sub>7</sub>SO<sub>3</sub>— and R<sup>5</sup> is hydrogen and its salts.

42. The method of Claim 20 wherein R is hydrogen,  $R^1$  is hydrogen,  $R^2$  is chlorine,  $R^3$  is 3— $C_2H_5S$ ,  $R^4$  is 4- $C_3H_7SO_2$ — and  $R^5$  is hydrogen and its salts.

43. The method of Claim 20 wherein R is hydrogen, R<sup>1</sup> is hydrogen, R<sup>2</sup> is chlorine, R<sup>3</sup> is 3-methoxy, R<sup>4</sup> is 4-CH<sub>3</sub>SO<sub>2</sub> and R<sup>5</sup> is hydrogen and its salts.

44. The method of Claim 20 wherein R is hydrogen, R<sup>1</sup> is hydrogen, R<sup>2</sup> is chlorine, R<sup>3</sup> is 3-chlorine, R<sup>4</sup> is

4-n-C<sub>3</sub>H<sub>7</sub>SO<sub>2</sub>— and R<sup>5</sup> is hydrogen and its salts.

45 A herbicidal composition comprising the compound of Claim 18 or one of its salts and an inert carrier therefor.

46. The method of controlling undesirable vegetation comprising applying to the area where control is desired a herbicidally effective amount of the compound of Claim 18 or one of its salts and an inert carrier therefor.

#### Claims for the Contracting State: AT

A process for preparing compounds having the structural formula

wherein

20

25

30

40

45

50

55

60

R and R¹ are hydrogen,  $C_1$ — $C_4$  alkyl, RªOC(O)—, where Rª is  $C_1$ — $C_4$  alkyl, R₂ is chlorine, bromine, iodine or  $C_1$ — $C_4$  alkoxy, and R³ and R⁴ and R⁵ independently are (1) hydrogen, (2) halogen, (3)  $C_1$ — $C_4$  alkyl, (4)  $C_1$ — $C_4$  alkoxy, (5) nitro, (6)  $C_1$ — $C_4$  haloalkyl, (7) R⁵SO<sub>n</sub>— wherein R⁵ is  $C_1$ — $C_4$  alkyl and n is the integer 0, 1 or 2, (8)

wherein  $R^{\circ}$  is  $C_1$ — $C_4$  alkyl, or (9)  $R^3$  and  $R^4$  together can form a ring structure with two adjacent carbon atoms of the phenyl ring, and their salts, with the proviso that compounds having the structural formula

wherein

R and R1 are hydrogen or C1-C4 alkyl,

R<sup>2</sup> is chlorine, bromine or iodine,

R<sup>3</sup> is hydrogen or halogen, and

 $R^4$  is hydrogen,  $C_1$ — $C_4$  alkyl,  $C_1$ — $C_4$  alkoxy, nitro, or trifluoromethyl are excluded.

comprising reacting a substituted dione of the general formula II

5

10

25

35

45

55

60

#### 0 137 963

with a substituted benzoyl cyanide of the general formula III

and working up the reaction product by conventional techniques.

2. The process of Claim 1 wherein R and R¹ are hydrogen or  $C_1$ — $C_4$  alkyl; R² is chlorine, bromine, iodine or  $C_1$ — $C_4$  alkoxy; R³ and R⁴ independently are hydrogen, halogen,  $C_1$ — $C_4$  alkoxy, nitro,  $C_1$ — $C_4$  haloalkyl, R⁵SO<sub>n</sub> wherein R⁵ is  $C_1$ — $C_4$  alkyl; and n is the integer 0, 1 or 2; R°C(O)NH— wherein is  $C_1$ — $C_4$  alkyl; R⁵ is hydrogen and their salts.

3. The process of Claim 1 wherein R and R¹ are hydrogen or methyl, R² is chlorine, bromine or methoxy; R³ is hydrogen, chlorine, dimethylamino or methoxy; R⁴ is hydrogen, chlorine, nitro, R $^{b}$ SO<sub>n</sub> wherein R $^{b}$  is C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub> alkyl and n is 0 or 2, SO<sub>2</sub>N(CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub> or CF<sub>3</sub>; and R⁵ is hydrogen, and their salts.

4. The process of Claim 3 wherein R³ is substituted at the 3-position, R⁴ is substituted at the 4-position and R⁵ their salts.

5. The process of Claim 3 wherein R and R¹ are hydrogen; R² is chlorine or methoxy; R³ is hydrogen, 3-chlorine, 3-methoxy, 3-ethoxy, 3-n-propoxy, 4-methoxy or 3-dimethyl-amino and R⁴ is 4-chlorine, 4-bromine, 4-CH₃SO₂—, 4C₂H₅SO₂—, or 4-CF₃SO₂—; and R⁵ is hydrogen and their salts.

6. The process of Claim 2 wherein R2 is chlorine are prepared.

7. The process of Claim 1 wherein salts of the compounds wherein R is methyl,  $R^1$  is methyl,  $R^2$  is chlorine,  $R^3$  is hydrogen,  $R^4$  is hydrogen and  $R^5$  is 6-chlorine are prepared.

8. The process of Claim 1 wherein salts of the compound wherein R is hydrogen, R<sup>1</sup> is hydrogen, R<sup>2</sup> is chlorine, R<sup>3</sup> is hydrogen, R<sup>4</sup> is hydrogen, R<sup>5</sup> is 6-chlorine are prepared.

9. The process of Claim 1 wherein salts of the compound wherein R is hydrogen R<sup>1</sup> is hydrogen, R<sup>2</sup> is chlorine, R<sup>3</sup> is hydrogen, R<sup>4</sup> is 4-chlorine and R<sup>5</sup> is hydrogen are prepared.

10. The process of Claim 1 wherein salts of the compound wherein R is hydrogen, R<sup>1</sup> is hydrogen R<sup>2</sup> is chlorine, R<sup>3</sup> is 3-chlorine and R<sup>4</sup> is hydrogen and R<sup>5</sup> is 6-chlorine are prepared.

11. The process of Claim 1 wherein salts of the compound wherein R is hydrogen, R<sup>1</sup> is hydrogen, R<sup>2</sup> is chlorine, R<sup>3</sup> is hydrogen, R<sup>4</sup> is hydrogen and R<sup>5</sup> is 5-trifluoromethyl are prepared.

12. The process of Claim 1 wherein salts of the compound wherein R is hydrogen, R<sup>1</sup> is hydrogen, R<sup>2</sup> is chlorine, R<sup>3</sup> is 3-chlorine, R<sup>4</sup> is 4-chlorine and R<sup>5</sup> is hydrogen are prepared.

13. The process of Claim 1 wherein salts of the compound wherein R is hydrogen, R<sup>1</sup> is hydrogen, R<sup>2</sup> is chlorine, R<sup>3</sup> is 3-chlorine, R<sup>4</sup> is 4-methoxy and R<sup>5</sup> is hydrogen are prepared.

14. The process of Claim 1 wherein salts of the compound wherein R is hydrogen, R<sup>1</sup> is hydrogen, R<sup>2</sup> is chlorine, R<sup>3</sup> is hydrogen, R<sup>4</sup> is 4-bromine and R<sup>5</sup> is hydrogen are prepared.

15. The process of Claim 1 wherein R is hydrogen, R<sup>1</sup> is hydrogen, R<sup>2</sup> is chlorine, R<sup>3</sup> is 3-chlorine, R<sup>4</sup> is nC<sub>3</sub>H<sub>7</sub>SO<sub>2</sub>— and R<sup>5</sup> is hydrogen and its salts.

16. The process of Claim 1 wherein salts of the compound wherein R is hydrogen, R<sup>1</sup> is hydrogen, R<sup>2</sup> is chlorine, R<sup>3</sup> is hydrogen, R<sup>4</sup> is 4-chlorine and R<sup>5</sup> is hydrogen are prepared.

17. The process of Claim 1 wherein R is isopropyl, R<sup>1</sup> is hydrogen, R<sup>2</sup> is chlorine, R<sup>3</sup> is 3-CH<sub>3</sub>, R<sup>4</sup> 4-CH<sub>3</sub>SO<sub>2</sub> and R<sup>5</sup> is hydrogen and its salts.

18. The process of Claim 1 wherein R is hydrogen, R<sup>1</sup> is hydrogen, R<sup>2</sup> is chlorine, R<sup>3</sup> is hydrogen, R<sup>4</sup> 4-CH<sub>2</sub>SO<sub>2</sub> and R<sup>5</sup> is hydrogen and its salts.

19. The process according to claim 12 wherein the sodium, isopropylamine, triethylamine and potassium salts are prepared.

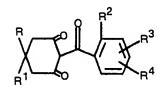
20. The method of controlling undesirable vegetation comprising applying to the area where control is desired, a herbicidally effective amount of a compound having the formula

wherein

R and R¹ are hydrogen,  $C_1$ — $C_4$  alkyl, R°OC(O)—, where R° is  $C_1$ — $C_4$  alkyl, R₂ is chlorine, bromine, iodine or  $C_1$ — $C_4$  alkoxy, and R³ and R⁴ and R⁵ independently are (1) hydrogen, (2) halogen, (3)  $C_1$ — $C_4$  alkyl, (4)  $C_1$ — $C_4$  alkoxy, (5) nitro, (6)  $C_1$ — $C_4$  haloalkyl, (7) R°SO<sub>n</sub>— wherein R° is  $C_1$ — $C_4$  alkyl and n is the integer 0, 1 or 2, (8)



wherein R° is C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub> alkyl, or (9) R³ and R⁴ together can form a ring structure with two adjacent carbon atoms of the phenyl ring, or one of its salts with the proviso that compounds having the structural formula



wherein

10

15

20

30

35

50

R and R1 are hydrogen or C1-C4 alkyl,

R<sup>2</sup> is chlorine, bromine or iodine,

R<sup>3</sup> is hydrogen or halogen, and

R<sup>4</sup> is hydrogen, C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub> alkyl, C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub> alkoxy, nitro, or trifluoromethyl

21. The method of claim 20 wherein R and R¹ are hydrogen or  $C_1$ — $C_4$  alkyl; R² is chlorine, bromine, iodine or  $C_1$ — $C_4$  alkoxy, R³ and R⁴ independently are hydrogen, halogen,  $C_1$ — $C_4$  alkyl,  $C_1$ — $C_4$  alkoxy, nitro,  $C_1$ — $C_4$  haloalkyl, R⁵SO<sub>n</sub> wherein R⁵ is  $C_1$ — $C_4$  alkyl; and n is the integer 0, 1 or 2; R°C(O)NH— wherein R° is  $C_1$ — $C_4$  alkyl; R⁵ is hydrogen; and their salts.

22. The method of claim 22 wherein R and R¹ are hydrogen or methyl; R² is chlorine, bromine or methoxy; R³ is hydrogen, chlorine or methoxy; R⁴ is hydrogen, chlorine nitro, R⁵SO<sub>n</sub> wherein R⁵ is C₁—C₄ alkyl and n is 0 or 2, SO₂N(CH₃)₂ or CF₃; and R⁵ is hydrogen and their salts.

23. The method of Claim 22 wherein R³ is substituted at the 3-position, R⁴ is substituted at the 4-position and R⁵ is substituted at the 5- or 6-position and their salts.

24. The method of Claim 22 wherein R and R<sup>1</sup> are hydrogen, R<sup>2</sup> is chlorine or methoxy; R<sup>3</sup> is hydrogen, 3-chlorine, 3-methoxy, 3-ethoxy, 3-n-propoxy, 4-methoxy or 3-dimethylamino; R<sup>4</sup> is 4-chlorine, 4-bromine, 4-CH<sub>3</sub>SO<sub>2</sub>, 4C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>SO<sub>2</sub>— or 4-CH<sub>3</sub>SO<sub>2</sub>; and R<sup>5</sup> is hydrogen and their salts.

25. The method of Claim 24 wherein R2 is chlorine and their salts.

26. The method of Claim 20 wherein a salt of a compound wherein R is methyl, R<sup>1</sup> is methyl, R<sup>2</sup> is chlorine, R<sup>3</sup> is hydrogen, R<sup>4</sup> is hydrogen and R<sup>5</sup> is 6-chlorine is applied.

27. The method of Claim 20 wherein a salt of a compound wherein R is hydrogen, R<sup>1</sup> is hydrogen, R<sup>2</sup> is chlorine, R<sup>3</sup> is hydrogen, R<sup>4</sup> is hydrogen, R<sup>5</sup> Is 6-chlorine is applied.

28. The method of Claim 20 wherein a salt of a compound wherein R is hydrogen, R<sup>1</sup> is hydrogen, R<sup>2</sup> is chlorine, R<sup>3</sup> is hydrogen, R<sup>4</sup> is 4-chlorine and R<sup>5</sup> is hydrogen is applied.

29. The method of Claim 20 wherein a salt of a compound wherein R is hydrogen, R<sup>1</sup> is hydrogen, R<sup>2</sup> is chlorine, R<sup>3</sup> is 3-chlorine and R<sup>4</sup> is hydrogen and R<sup>5</sup> is 6-chlorine is applied.

30. The method of Claim 20 wherein a salt of a compound wherein R is hydrogen, R<sup>1</sup> is hydrogen, R<sup>2</sup> is chlorine, R<sup>3</sup> is hydrogen, R<sup>4</sup> is hydrogen and R<sup>5</sup> is 5-trifluoromethyl is applied.

31. The method of Claim 20 wherein a salt of a compound wherein R is hydrogen, R<sup>1</sup> is hydrogen, R<sup>2</sup> is chlorine, R<sup>3</sup> is 3-chlorine, R<sup>4</sup> is 4-chlorine and R<sup>5</sup> is hydrogen is applied.

32. The method of Claim 20 wherein a salt of a compound wherein R is hydrogen, R<sup>1</sup> is hydrogen, R<sup>2</sup> is chlorine, R<sup>3</sup> is 3-chlorine, R<sup>4</sup> is 4-methoxy and R<sup>5</sup> is hydrogen is applied.

33. The method of Claim 20 wherein a salt of a compound wherein R is hydrogen, R<sup>1</sup> is hydrogen, R<sup>2</sup> is chlorine, R<sup>3</sup> is hydrogen, R<sup>4</sup> is 4-bromine and R<sup>5</sup> is hydrogen is applied.

34. The method of Claim 20 wherein R is hydrogen, R<sup>1</sup> is hydrogen, R<sup>2</sup> is chlorine, R<sup>3</sup> is 3-chlorine, R<sup>4</sup> is nC<sub>3</sub>H<sub>7</sub>SO<sub>2</sub>— and R<sup>5</sup> is hydrogen and its salts.

35. The method of Claim 20 wherein R is isopropyl, R<sup>1</sup> is hydrogen, R<sup>2</sup> is chlorine, R<sup>3</sup> is hydrogen, R<sup>4</sup> is 4-chlorine and R<sup>5</sup> is hydrogen and its salts.

36. The method of Claim 20 wherein R is hydrogen, R<sup>1</sup> is hydrogen, R<sup>2</sup> is chlorine, R<sup>3</sup> is 3—CH<sub>3</sub>O, R<sup>4</sup> is 4-CH<sub>3</sub>SO<sub>2</sub>, chlorine and R<sup>5</sup> is hydrogen and its salts.

37. The method of Claim 20 wherein R is hydrogen, R<sup>1</sup> is hydrogen, R<sup>2</sup> is chlorine, R<sup>3</sup> is hydrogen, R<sup>4</sup> is 4-CH<sub>3</sub>SO<sub>2</sub> and R<sup>5</sup> is hydrogen and its salts.

38. The method of Claim 20 wherein the salts are the sodium, isopropylamine, triethylamine and potassium salts.

39. The process of Claim 1 wherein R is hydrogen, R<sup>1</sup> is hydrogen, R<sup>2</sup> is chlorine, R<sup>3</sup> is 3—C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>S, R<sup>4</sup> is 4—C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>SO<sub>2</sub> and R<sup>5</sup> is hydrogen and its salts.

40. The process of Claim 1 wherein R is hydrogen, R<sup>1</sup> is hydrogen, R<sup>2</sup> is chlorine, R<sup>3</sup> is 3-methoxy, R<sup>4</sup> is 4—CH<sub>3</sub>SO<sub>2</sub> and R<sup>5</sup> is hydrogen and its salts,

- 41. The process of Claim 1 wherein R is hydrogen, R<sup>1</sup> is hydrogen, R<sup>2</sup> is chlorine, R<sup>3</sup> is 3-chlorine, R<sup>4</sup> is 4-n-C<sub>3</sub>H<sub>7</sub>SO<sub>2</sub>— and R<sup>5</sup> is hydrogen and its salts.
- 42. The method of Claim 20 wherein R is hydrogen, R<sup>1</sup> Is hydrogen, R<sup>2</sup> is chlorine, R<sup>3</sup> is 3— $C_2H_5S$ , R<sup>4</sup> is 4- $C_2H_5SO_2$  and R<sup>5</sup> is hydrogen and its salts.
- 43. The method of Claim 20 wherein R is hydrogen, R<sup>1</sup> is hydrogen, R<sup>2</sup> is chlorine, R<sup>3</sup> is 3-methoxy, R<sup>4</sup> is 4-CH<sub>3</sub>SO<sub>2</sub> and R<sup>5</sup> is hydrogen and its salts.
- 44. The method of Claim 20 wherein R is hydrogen, R¹ is hydrogen, R² is chlorine, R³ is 3-chlorine, R⁴ is 4-n-C₃H₂SO₂— and R⁵ is hydrogen and its salts.
- 45. A process for preparing a herbicidal composition comprising mixing the compound of Claim 18 or one of its salts and an inert carrier therefor.
  - 46. The method of controlling undeslrable vegetation comprising applying to the area where control is desired, a herbicidally effective amount of the compound of Claim 18 or one of its salts and an inert carrier therefor.

### 15 Patentansprüche für die Vertragsstaaten: BE GB FR DE NL IT SE CH LI

#### 1. Verbindung der Strukturformel

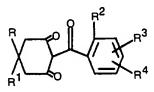
dadurch gekennzeichnet, daß

R und R¹ Wasserstoff, C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub>-Alkyl, RºOC(O)—, worin Rº für C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub>-Alkyl steht, bedeuten,

R<sup>2</sup> Chlor, Brom, Jod oder C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub>-Alkoxy bedeutet, und

R<sup>3</sup> und R<sup>4</sup> und R<sup>5</sup> unabhängig (1) Wasserstoff, (2) Halogen, (3) C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub>-Alkyl, (4) C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub>-Alkoxy, (5) Nitro (6) C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub>-Haloalkyl, (7) R<sup>b</sup>SO<sub>n</sub>—, worin R<sup>b</sup> für C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub>-Alkyl steht und n eine ganze Zahl von 0, 1 oder 2 bedeutet, (8)

worin  $R^{\circ}$  für  $C_1$ — $C_4$ -Alkyl steht, bedeuten, (9)  $R^3$  und  $R^4$  zusammen mit zwei benachbarten Kohlenstoffatomen des Phenylrings eine Ringstruktur bilden, und ihre Salze, mit der Maßgabe, daß Verbindungen der Strukturformel



worin

20

25

35

40

45

50

R und R1 Wasserstoff oder C1-C4-Alkyl,

R2 Chlor, Brom oder Jod,

R3 Wasserstoff oder Halogen, und

R<sup>4</sup> Wasserstoff, Halogen, C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub>-Alkoxy, Nitro oder Trifluormethyl bedeuten,

ausgeschlossen sind.

- 2. Verbindung nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß R und R¹ Wasserstoff oder C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub>-Alkyl; R² Chlor, Brom, Jod oder C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub>-Alkoxy; R³ und R⁴ unabhängig Wasserstoff, Halogen, C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub>-Alkoxy, Nitro, C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub>-Haloalkyl, R⁵SO<sub>n</sub>, worin R⁵ für C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub>-Alkyl steht und n die ganze Zahl 0, 1 oder 2 bedeutet; R°C(O)NH—, worin R° für C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub>-Alkyl steht; R⁵ Wasserstoff bedeuten, und Ihre Salze.
- 3. Verbindungen nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß R und R¹ Wasserstoff oder Methyl; R² Chlor, Brom oder Methoxy; R³ Wasserstoff, Chlor, Dimethylamino oder Methoxy; R⁴ Wasserstoff, Chlor, Nitro, R⁵SO<sub>n</sub>, worin R⁵ für C₁—C₄-Alkyl steht und n 0 oder 2 bedeutet, SO₂N(CH₃)₃ oder CF₃; und R⁵ Wasserstoff bedeuten, und ihre Salze.
  - 4. Verbindungen nach Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, daß R³ in der 3-Stellung substituiert ist, R⁴ in der 4-Stellung substituiert ist und R⁵ in der 5- oder 6-Stellung substituiert ist, und ihre Salze.
- 5. Verbindungen nach Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, daß R und R¹ Wasserstoff; R² Chlor oder Methoxy; R³ Wasserstoff, 3-Chlor, 3-Methoxy, 3-Ethoxy, 3-n-Propoxy, 4-Methoxy oder 3-Dimethylamino

und R<sup>4</sup> 4-Chlor, 4-Brom, 4-CH<sub>3</sub>SO<sub>2</sub>—, 4C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>SO<sub>2</sub>— oder 4-CF<sub>3</sub>SO<sub>2</sub> und R<sup>5</sup> Wasserstoff bedeuten, und Ihre Salze.

6. Salze der Verbindungen nach Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, daß R<sup>2</sup> Chlor bedeutet.

7. Salze der Verbindungen nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß R Methyl, R¹ Methyl, R² Chlor, R³ Wasserstoff, R⁴ Wasserstoff und R⁵ 6-Chlor bedeuten.

8. Salze der Verbindung nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß R Wasserstoff, R¹ Wasserstoff,

R<sup>2</sup> Chlor, R<sup>3</sup> Wasserstoff, R<sup>4</sup> Wasserstoff, R<sup>5</sup> 6-Chlor bedeuten.

9. Salze der Verbindung nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß R Wasserstoff, R¹ Wasserstoff, R² Chlor, R³ Wasserstoff, R⁴ 4-Chlor und R⁵ Wasserstoff bedeuten.

10. Salze der Verbindung nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß R Wasserstoff, R¹ Wasserstoff, R² Chlor, R³ 3-Chlor und R⁴ Wasserstoff und R⁵ 6-Chlor bedeuten.

11. Salze der Verbindung nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß R Wasserstoff, R¹ Wasserstoff, R² Chlor, R³ Wasserstoff, R⁴ Wasserstoff und R⁵ 5-Trifluormethyl bedeuten.

12. Salze der Verbindung nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß R Wasserstoff, R¹ Wasserstoff, R² Chlor, R³ 3-Chlor, R⁴ 4-Chlor und R⁵ Wasserstoff bedeuten.

13. Salze der Verbindung nach Anspruch 1, dasserstoff bedouten.

Wasserstoff, R<sup>2</sup> Chlor, R<sup>3</sup> 3-Chlor, R<sup>4</sup> 4-Methoxy und R<sup>5</sup> Wasserstoff bedeuten.

14. Salze der Verbindung nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß R Wasserstoff, R<sup>1</sup> Wasserstoff, R<sup>2</sup> Chlor, R<sup>3</sup> Wasserstoff, R<sup>4</sup> 4-Brom und R<sup>5</sup> Wasserstoff bedeuten.

15. Verbindung nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß R Wasserstoff, R¹ Wasserstoff, R² Chlor, R³ 3-Chlor, R⁴ nC₃H₁SO₂— und R⁵ Wasserstoff bedeuten, und ihre Salze.

16. Salze der Verbindung nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß R Isopropyl, R¹ Wasserstoff, R² Chlor, R³ Wasserstoff, R⁴ 4-Chlor und R⁵ Wasserstoff bedeuten.

17. Verbindung nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß R Isopropyl, R¹ Wasserstoff, R² Chlor,

R3 3-CH3, R4 4-CH3SO2 und R5 Wasserstoff bedeuten, und ihre Salze.

18. Verbindung nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß R Wasserstoff, R¹ Wasserstoff, R² Chlor, R³ Wasserstoff, R⁴ 4-CH₃SO₂ und R⁵ Wasserstoff bedeuten, und ihre Salze.

19. Salze nach Anspruch 12, nämlich Natrium-, Isopropylamin, Triethylamin- und Kaliumsalze.

20. Verfahren zur Kontrolle unerwünschter Vegetation, dadurch gekennzeichnet, daß man auf die Fläche, wo eine Kontrolle erfolgen soll, eine herbizid wirksame Menge der Formel

worin

35

40

45

55

60

10

R und R $^1$  Wasserstoff, C $_1$ —C $_4$ -Alkyl, R $^a$ OC(O)—, worin R $^a$  für C $_1$ —C $_4$ -Alkyl steht, bedeuten,

R<sup>2</sup> Chlor, Brom, Jod oder C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub>-Alkoxy bedeutet, und

R³ und R⁴ und R⁵ unabhāngig (1) Wasserstoff, (2) Halogen, (3) C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub>-Alkyl, (4) C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub>-Alkoxy, (5) Nitro, (6) C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub>-Haloalkyl, (7) R⁵SO<sub>n</sub>—, worin R⁵ für C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub>-Alkyl steht und n eine ganze Zahl von 0, 1 oder 2 bedeutet, (8)

worin R° für C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub>-Alkyl steht, bedeuten, (9) R³ und R⁴ zusammen mit zwei benachbarten Kohlenstoffatomen des Phenylrings eine Ringstruktur bilden, oder eines ihrer Salze anwendet, mit der Maßgabe, daß Verbindungen der Strukturformel

worin

R und R<sup>1</sup> Wasserstoff oder C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub>-Alkyl, R<sup>2</sup> Chlor, Brom oder Jod, R<sup>3</sup> Wasserstoff oder Helegan und

65 R³ Wasserstoff oder Halogen und

R<sup>4</sup> Wasserstoff, Halogen, C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub>-Alkoxy, Nitro oder Trifluormethyl bedeuten,

ausgeschlossen sind.

21. Verfahren nach Anspruch 20, dadurch gekennzeichnet, daß R und R¹ Wasserstoff oder C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub>-Alkyl; R² Chlor, Brom, Jod oder C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub>-Alkoxy; R³ und R⁴ unabhängig Wasserstoff, Halogen, C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub>-Alkoxy, Nitro, C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub>-Haloalkyl, R⁵SO<sub>n</sub>, worin R⁵ für C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub>-Alkyl steht und n die ganze Zahl 0, 1 oder 2 bedeutet; R°C(O)NH—, worin R° für C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub>-Alkyl steht; R⁵ Wasserstoff bedeuten, und ihre Salze.

22. Verfahren nach Anspruch 20, dadurch gekennzeichnet, daß R und R¹ Wasserstoff oder Methyl; R² Chlor, Brom oder Methoxy; R³ Wasserstoff, Chlor, Methoxy; R⁴ Wasserstoff, Chlor, Nitro, R⁵SO<sub>n</sub>, worin R⁵ für C₁—C₄-Alkyl steht und n 0 oder 2 bedeutet, SO₂N(CH₃)₂ oder CF₃; und R⁵ Wasserstoff bedeuten, und ihre

Salze.

20

35

45

55

23. Verfahren nach Anspruch 22, dadurch gekennzeichnet, daß R³ in der 3-Stellung substituiert ist, R⁴ in

der 4-Stellung substitulert ist und R5 in der 5- oder 6-Stellung substituiert ist, und ihre Salze.

- 24. Verfahren nach Anspruch 22, dadurch gekennzeichnet, daß R und R¹ Wasserstoff; R² Chlor oder Methoxy; R³ Wasserstoff, 3-Chlor, 3-Methoxy, 3-Ethoxy, 3-n-Propoxy, 4-Methoxy oder 3-Dimethylamino und R⁴ 4-Chlor, 4-Brom, 4-CH₃SO₂—, 4C₂H₅SO₂— oder 4-CF₃SO₂ und R⁵ Wasserstoff bedeuten, und Ihre Salze.
  - 25. Verfahren nach Anspruch 24, dadurch gekennzeichnet, daß R<sup>2</sup> Chlor bedeutet, und ihre Salze.
- 26. Verfahren nach Anspruch 20, dadurch gekennzeichnet, daß ein Salz einer Verbindung, worin R Methyl, R¹ Methyl, R² Chlor, R³ Wasserstoff, R⁴ Wasserstoff und R⁵ 6-Chlor bedeuten, angewendet wird.
- 27. Verfahren nach Anspruch 20, dadurch gekennzeichnet, daß ein Salz einer Verbindung, worin R Wasserstoff, R¹ Wasserstoff, R² Chlor, R³ Wasserstoff, R⁴ Wasserstoff, R⁵ 6-Chlor bedeuten, angewendet wird.
- 28. Verfahren nach Anspruch 20, dadurch gekennzeichnet, daß ein Salz einer Verbindung, worin R Wasserstoff, R¹ Wasserstoff, R² Chlor, R³ Wasserstoff, R⁴ 4-Chlor und R⁵ Wasserstoff bedeuten, angewendet wird.
- 29. Verfahren nach Anspruch 20, dadurch gekennzeichnet, daß ein Salz einer Verbindung, worin R Wasserstoff, R¹ Wasserstoff, R² Chlor, R³ 3-Chlor und R⁴ Wasserstoff und R⁵ 6-Chlor bedeuten, angewendet wird.
- 30. Verfahren nach Anspruch 20, dadurch gekennzeichnet, daß ein Salz einer Verbindung, worin R Wasserstoff, R¹ Wasserstoff, R² Chlor, R³ Wasserstoff, R⁴ Wasserstoff und R⁵ 5-Trifluormethyl bedeuten, angewendet wird.
  - 31. Verfahren nach Anspruch 20, dadurch gekennzeichnet, daß ein Salz einer Verbindung, worin R Wasserstoff, R<sup>1</sup> Wasserstoff, R<sup>2</sup> Chlor, R<sup>3</sup> 3-Chlor, R<sup>4</sup> 4-Chlor und R<sup>5</sup> Wasserstoff bedeuten, angewendet wird.
  - 32. Verfahren Rach Anspruch 20, dadurch gekennzelchnet, daß ein Salz einer Verbindung, worin R Wasserstoff, R¹ Wasserstoff, R² Chlor, R³ 3-Chlor, R⁴ 4-Methoxy und R⁵ Wasserstoff bedeuten, angewendet wird.
  - 33. Verfahren nach Anspruch 20, dadurch gekennzelchnet, daß ein Salz einer Verbindung, worin R Wasserstoff, R<sup>1</sup> Wasserstoff, R<sup>2</sup> Chlor, R<sup>3</sup> Wasserstoff, R<sup>4</sup> 4-Brom und R<sup>5</sup> Wasserstoff bedeuten, angewendet wird.
  - 34. Verfahren nach Anspruch 20, dadurch gekennzeichnet, daß R Wasserstoff, R<sup>1</sup> Wasserstoff, R<sup>2</sup> Chlor, R<sup>3</sup> 3-Chlor, R<sup>4</sup>  $nC_3H_7SO_2$  und R<sup>5</sup> Wasserstoff bedeuten, und ihre Salze.
  - 35. Verfahren nach Anspruch 20, dadurch gekennzeichnet, daß R Isopropyl, R¹ Wasserstoff, R² Chlor, R³ Wasserstoff, R⁴ 4-Chlor und R⁵ Wasserstoff bedeuten, und ihre Salze.
  - 36. Verfahren nach Anspruch 20, dadurch gekennzeichnet, daß R Wasserstoff, R<sup>1</sup> Wasserstoff, R<sup>2</sup> Chlor. R<sup>3</sup> 3-CH<sub>3</sub>O, R<sup>4</sup> 4-CH<sub>3</sub>SO<sub>2</sub>, Chlor und R<sup>5</sup> Wasserstoff bedeuten, und ihre Salze.
  - 37. Verfahren nach Anspruch 20, dadurch gekennzeichnet, daß R Wasserstoff, R<sup>1</sup> Wasserstoff, R<sup>2</sup> Chlor, R<sup>3</sup> Wasserstoff, R<sup>4</sup> 4-CH<sub>3</sub>SO<sub>2</sub> und R<sup>5</sup> Wasserstoff bedeuten, und ihre Salze.
  - 38. Verfahren nach Anspruch 20, dadurch gekennzeichnet, daß die Salze die Natrium-, Isopropylamin-, Triethylamin- und Kaljumsalze sind.
  - 39. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß R Wasserstoff, R¹ Wasserstoff, R² Chlor, R³ 3-C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>S, R⁴ 4-C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>SO<sub>2</sub> und R₅ Wasserstoff bedeuten, und ihre Salze.
  - 40. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß R Wasserstoff, R¹ Wasserstoff, R² Chlor, R³ 3-Methoxy, R⁴ 4-CH₃SO₂ und R⁵ Wasserstoff bedeuten, und ihre Salze.
  - 41. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß R Wasserstoff, R¹ Wasserstoff, R² Chlor, R³ 3-Chlor, R⁴ 4-n-C₃H<sub>7</sub>SO₂— und R⁵ Wasserstoff bedeuten, und Ihre Salze.
  - 42. Verfahren nach Anspruch 20, dadurch gekennzeichnet, daß R Wasserstoff, R¹ Wasserstoff, R² Chlor, R³ 3-C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>S, R⁴ 4-C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>SO<sub>2</sub> und R⁵ Wasserstoff bedeuten, und ihre Salze.
- 43. Verfahren nach Anspruch 20, dadurch gekennzeichnet, daß R Wasserstoff, R¹ Wasserstoff, R² Chlor, R³ 3-Methoxy, R⁴ 4-CH₃SO₂ und R⁵ Wasserstoff bedeuten, und ihre Salze.
- 44. Verfahren nach Anspruch 20, dadurch gekennzeichnet, daß R Wasserstoff, R<sup>1</sup> Wasserstoff, R<sup>2</sup> Chlor, R<sup>3</sup> 3-Chlor, R<sup>4</sup> 4-n-C<sub>3</sub>H<sub>7</sub>SO<sub>2</sub>— und R<sup>5</sup> Wasserstoff bedeuten, und ihre Salze.
- 45. Herbizide Zubereitung, dadurch gekennzeichnet, daß sie die Verbindung nach Anspruch 18 oder eines ihrer Salze und einen inerten Träger dafür enthält.
  - 46. Verfahren zur Kontrolle unerwünschter Vegetation, dadurch gekennzeichnet, daß man auf die

Fläche, wo eine Kontrolle erfolgen soll, eine herbizid wirksame Menge der Verbindung nach Anspruch 18 oder eines ihrer Salze und einen inerten Träger dafür anwendet.

#### Patentansprüche für den Vertragsstaat: AT

1. Verfahren zur Herstellung von Verbindungen der Strukturformel

worin

5

10

15

25

35

40

45

55

60

R und R<sup>1</sup> Wasserstoff, C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub>-Alkyl, R<sup>a</sup>OC(O)—, worin R<sup>a</sup> für C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub>-Alkyl steht, bedeuten,

R<sup>2</sup> Chlor, Brom, Jod oder C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub>-Alkoxy bedeutet, und

R³ und R⁴ und R⁵ unabhängig (1) Wasserstoff, (2) Halogen, (3) C₁—C₄-Alkyl, (4) C₁—C₄-Alkoxy, (5) Nitro, (6) C₁—C₄-Haloalkyl, (7) R⁵SO<sub>n</sub>—, worin R⁵ für C₁—C₄-Alkyl steht und n eine ganze Zahl von 0, 1 oder 2 bedeutet, (8)

worin  $R^{\circ}$  für  $C_1$ — $C_4$ -Alkyl steht, bedeuten, (9)  $R^3$  und  $R^4$  zusammen mit zwei benachbarten Kohlenstoffatomen des Phenylrings eine Ringstruktur bilden, und ihre Salze, mit der Maßgabe, daß Verbindungen der Strukturformel

worin

R und R<sup>1</sup> Wasserstoff oder C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub>-Alkyl,

R<sup>2</sup> Chlor, Brom oder Jod,

R3 Wasserstoff oder Halogen, und

R<sup>4</sup> Wasserstoff, Halogen, C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub>-Alkoxy, Nitro oder Trifluormethyl bedeuten, ausgeschlossen sind, dadurch gekennzeichnet, daß man ein substituiertes Dion der allgemeinen Formel II

mit einem substituierten Benzolycyanid der allgemeinen Formel III

umsetzt und das Reaktionsprodukt in an sich bekannter Weise aufarbeitet.

2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß R und R¹ Wasserstoff oder C₁—C₄-Alkyl; R² Chlor, Brom, Jod oder C₁—C₄-Alkoxy; R³ und R⁴ unabhängig Wasserstoff, Halogen, C₁—C₄-Alkyl, C₁—C₄-Alkoxy, Nitro, C₁—C₄-Haloalkyl, R⁵SOn, worin R⁵ für C₁—C₄-Alkyl steht und n die ganze Zahl 0, 1 oder 2 bedeutet; R°C(O)NH—, worin R° für C₁—C₄-Alkyl steht; R⁵ Wasserstoff bedeuten, und ihre Salze.

#### 0.137 963

3. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß R und R¹ Wasserstoff oder Methyl; R² Chlor, Brom oder Methoxy; R³ Wasserstoff, Chlor, Dimethylamino oder Methoxy; R⁴ Wasserstoff, Chlor, Nitro, R⁵SO<sub>n</sub>, worin R⁵ für C₁—C₄-Alkyl steht und n 0 oder 2 bedeutet, SO₂N(CH₃)₂ oder CF₃; und R⁵ Wasserstoff bedeuten, und ihre Salze.

4. Verfahren nach Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, daß R3 in der 3-Stellung substituiert ist, R4 in

der 4-Stellung substituiert ist, und ihre Salze.

5. Verfahren nach Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, daß R und R¹ Wasserstoff; R² Chlor oder Methoxy; R³ Wasserstoff, 3-Chlor, 3-Methoxy, 3-Ethoxy, 3-n-Propoxy, 4-Methoxy oder 3-Dimethylamino und R⁴ 4-Chlor, 4-Brom, 4-CH₃SO₂—, 4C₂H₅SO₂— oder 4-CF₃SO₂ und R⁵ Wasserstoff bedeuten, und ihre Salze.

6. Verfahren nach Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, daß Salze der Verbindungen, worin R<sup>2</sup> Chlor

bedeutet, hergestellt werden.

7. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß Salze der Verbindungen, worin R Methyl, R¹ Methyl, R² Chlor, R³ Wasserstoff, R⁴ Wasserstoff und R⁵ 6-Chlor bedeuten, hergestellt werden.

- 8. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß Salze der Verbindung, worin R Wasserstoff, R¹ Wasserstoff, R² Chlor, R³ Wasserstoff, R⁴ Wasserstoff, R⁵ 6-Chlor bedeuten, hergestellt werden.
- 9. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß Salze der Verbindung, worin R Wasserstoff, R¹ Wasserstoff, R² Chlor, R³ Wasserstoff, R⁴ 4-Chlor und R⁵ Wasserstoff bedeuten, hergestellt werden
- 10. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß Salze der Verbindung, worin R Wasserstoff, R¹ Wasserstoff, R² Chlor, R³ 3-Chlor und R⁴ Wasserstoff und R⁵ 6-Chlor bedeuten, hergestellt werden.
- 11. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß Salze der Verbindung, worin R Wasserstoff, R¹ Wasserstoff, R² Chlor, R³ Wasserstoff, R⁴ Wasserstoff und R⁵ 5-Trifluormethyl bedeuten, hergestellt werden.
- 12. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß Salze der Verbindung, worin R Wasserstoff, R¹ Wasserstoff, R² Chlor, R³ 3-Chlor, R⁴ 4-Chlor und R⁵ Wasserstoff bedeuten, hergestellt werden.
- 13. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß Salze der Verbindung, worin R Wasserstoff, R<sup>1</sup> Wasserstoff, R<sup>2</sup> Chlor, R<sup>3</sup> 3-Chlor, R<sup>4</sup> 4-Methoxy und R<sup>5</sup> Wasserstoff bedeuten, hergestellt werden.
- 14. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß Salze der Verbindung, worin R Wasserstoff, R¹ Wasserstoff, R² Chlor, R³ Wasserstoff, R⁴ 4-Brom und R⁵ Wasserstoff bedeuten, hergestellt werden.
- 15. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß R Wasserstoff, R $^1$  Wasserstoff, R $^2$  Chlor, R $^3$  3-Chlor, R $^4$  nC $_3$ H $_7$ SO $_2$  und R $^5$  Wasserstoff bedeuten, und ihre Salze.
- 16. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß Salze der Verbindung, worin R Isopropyl, R¹ Wasserstoff, R² Chlor, R³ Wasserstoff, R⁴ 4-Chlor und R⁵ Wasserstoff bedeuten, hergestellt werden.
- 17. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß R Isopropyl, R¹ Wasserstoff, R² Chlor, R³ 3-CH₃, R⁴ 4-CH₃SO₂ und R⁵ Wasserstoff bedeuten, und ihre Salze.
- 18. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß R Wasserstoff, R¹ Wasserstoff, R² Chlor, R³ Wasserstoff, R⁴ 4-CH₃SO₂ und R⁵ Wasserstoff bedeuten, und ihre Salze.
- 19. Verfahren nach Anspruch 12, dadurch gekennzeichnet, daß die Natrium-, Isopropylamin-, Triethylamin- und Kaliumsalze hergestellt werden.
- 20. Verfahren zur Kontrolle unerwünschter Vegetation, dadurch gekennzeichnet, daß man auf die Fläche, wo eine Kontrolle erfolgen soll, eine herbizid wirksame Menge einer Verbindung der Formel

worin

35

50

55

60

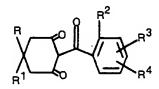
R und R1 Wasserstoff, C1-C4-Alkyl, R2OC(O)-, worin R2 für C1-C4-Alkyl steht, bedeuten,

R<sup>2</sup> Chlor, Brom, Jod oder C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub>-Alkoxy bedeutet, und

R³ und R⁴ und R⁵ unabhängig (1) Wasserstoff, (2) Halogen, (3) C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub>-Alkyl, (4) C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub>-Alkoxy, (5) Nitro, (6) C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub>-Haloalkyl, (7) R⁵SO<sub>n</sub>—, worin R⁵ für C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub>-Alkyl steht und n eine ganze Zahl von 0, 1 oder 2 bedeutet, (8)



worin R° für C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub>-Alkyl steht, bedeuten, (9) R³ und R⁴ zusammen mit zwei benachbarten Kohlenstoffatomen des Phenylrings eine Ringstruktur bilden oder eines ihrer Salze anwendet, mit der Maßgabe, daß Verbindungen der Strukturformel



worin

10

15

R und R1 Wasserstoff oder C1-C4-Alkyl,

R<sup>2</sup> Chlor, Brom oder Jod,

R3 Wasserstoff oder Halogen, und

<sup>20</sup> R<sup>4</sup> Wasserstoff, Halogen, C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>—C<sub>4</sub>-Alkoxy, Nitro oder Trifluormethyl bedeuten, ausgeschlossen sind.

21. Verfahren nach Anspruch 20, dadurch gekennzeichnet, daß R und R¹ Wasserstoff oder  $C_1$ — $C_4$ -Alkyl; R² Chlor, Brom, Jod oder  $C_1$ — $C_4$ -Alkoxy; R³ und R⁴ unabhängig Wasserstoff, Halogen,  $C_1$ — $C_4$ -Alkyl,  $C_1$ — $C_4$ -Alkoxy, Nitro,  $C_1$ — $C_4$ -Haloalkyl, R⁵SO<sub>n</sub>, worin R⁵ für  $C_1$ — $C_4$ -Alkyl steht und n die ganze Zahl 0, 1 oder 2 bedeutet; R°C(O)NH—, worin R° für  $C_1$ — $C_4$ -Alkyl steht; R⁵ Wasserstoff bedeuten, und ihre Salze.

22. Verfahren nach Anspruch 20, dadurch gekennzeichnet, daß R und R¹ Wasserstoff oder Methyl; R² Chlor, Brom oder Methoxy; R³ Wasserstoff, Chlor oder Methoxy; R⁴ Wasserstoff, Chlor, Nitro, R⁵SO<sub>n</sub>, worin R⁵ für C₁—C₄-Alkyl steht und n 0 oder 2 bedeutet, SO₂N(CH₃)₂ oder CF₃; und R⁵ Wasserstoff bedeuten, und ihre Salze.

23. Verfahren nach Anspruch 22, dadurch gekennzeichnet, daß R³ in der 3-Stellung substituiert ist, R⁴ in der 4-Stellung substituiert ist und R⁵ in der 5- oder 6-Stellung substituiert ist, und ihre Salze.

24. Verfahren nach Anspruch 22, dadurch gekennzeichnet, daß R und R¹ Wasserstoff; R² Chlor oder Methoxy; R³ Wasserstoff, 3-Chlor, 3-Methoxy, 3-Ethoxy, 3-n-Propoxy, 4-Methoxy oder 3-Dimethylamino und R⁴ 4-Chlor, 4-Brom, 4-CH₃SO₂—, 4C₂H₅SO₂— oder 4-CF₃SO₂ und R⁵ Wasserstoff bedeuten, und ihre Salze.

25. Verfahren nach Anspruch 24, dadurch gekennzeichnet, daß R2 Chlor bedeutet, und ihre Salze.

26. Verfahren nach Anspruch 20, dadurch gekennzeichnet, daß ein Salz einer Verbindung, worin R Methyl, R¹ Methyl, R² Chlor, R³ Wasserstoff, R⁴ Wasserstoff und R⁵ 6-Chlor bedeuten, angewendet wird.

27. Verfahren nach Anspruch 20, dadurch gekennzeichnet, daß ein Salz einer Verbindung, worin R Wasserstoff, R¹ Wasserstoff, R² Chlor, R³ Wasserstoff, R⁴ Wasserstoff, R⁵ 6-Chlor bedeuten, angewendet wird.

28. Verfahren nach Anspruch 20, dadurch gekennzeichnet, daß ein Salz einer Verbindung, worin R Wasserstoff, R¹ Wasserstoff, R² Chlor, R³ Wasserstoff, R⁴ 4-Chlor und R⁵ Wasserstoff bedeuten, angewendet wird.

29. Verfahren nach Anspruch 20, dadurch gekennzeichnet, daß ein Salz einer Verbindung, worin R Wasserstoff, R¹ Wasserstoff, R² Chlor, R³ 3-Chlor und R⁴ Wasserstoff und R⁵ 6-Chlor bedeuten, angewendet wird.

30. Verfahren nach Anspruch 20, dadurch gekennzeichnet, daß ein Salz einer Verbindung, worin R Wasserstoff, R¹ Wasserstoff, R² Chlòr, R³ Wasserstoff, R⁴ Wasserstoff und R⁵ 5-Trifluormethyl bedeuten, angewendet wird.

31. Verfahren nach Anspruch 20, dadurch gekennzeichnet, daß ein Salz einer Verbindung, worin R Wasserstoff, R¹ Wasserstoff, R² Chlor, R³ 3-Chlor, R⁴ 4-Chlor und R⁵ Wasserstoff bedeuten, angewendet wird.

32. Verfahren nach Anspruch 20, dadurch gekennzeichnet, daß ein Salz einer Verbindung, worin R Wasserstoff, R¹ Wasserstoff, R² Chlor, R³ 3-Chlor, R⁴ 4-Methoxy und R⁵ Wasserstoff bedeuten, angewendet wird.

33. Verfahren nach Anspruch 20, dadurch gekennzeichnet, daß ein Salz einer Verbindung, worin R Wasserstoff, R¹ Wasserstoff, R² Chlor, R³ Wasserstoff, R⁴ 4-Brom und R⁵ Wasserstoff bedeuten, angewendet wird.

34. Verfahren nach Anspruch 20, dadurch gekennzeichnet, daß R Wasserstoff, R<sup>1</sup> Wasserstoff, R<sup>2</sup> Chlor, R<sup>3</sup> 3-Chlor, R<sup>4</sup>  $nC_3H_7SO_2$ — und R<sup>5</sup> Wasserstoff bedeuten, und ihre Salze.

35. Verfahren nach Anspruch 20, dadurch gekennzeichnet, daß R Isopropyl, R<sup>1</sup> Wasserstoff, R<sup>2</sup> Chlor, R<sup>3</sup> Wasserstoff, R<sup>4</sup> 4-Chlor und R<sup>5</sup> Wasserstoff bedeuten, und ihre Salze.

36. Verfahren nach Anspruch 20, dadurch gekennzeichnet, daß R Wasserstoff, R¹ Wasserstoff, R² Chlor, 65 R³ 3-CH₃O, R⁴ 4-CH₃SO₂, Chlor und R⁵ Wasserstoff bedeuten, und ihre Salze.

- 37. Verfahren nach Anspruch 20, dadurch gekennzeichnet, daß R Wasserstoff, R¹ Wasserstoff, R² Chlor, R³ Wasserstoff, R⁴ 4-CH₃SO₂ und R⁵ Wasserstoff bedeuten, und ihre Salze.
- 38. Verfahren nach Anspruch 20, dadurch gekennzeichnet, daß die Salze die Natrium-, Isopropylamin-, Triethylamin- und Kaliumsalze sind.
- 39. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß R Wasserstoff, R¹ Wasserstoff, R² Chlor, R³ 3-C₂H₅S, R⁴ 4-C₂H₅SO₂ und R⁵ Wasserstoff bedeuten, und ihre Salze.
- 40. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß R Wasserstoff, R¹ Wasserstoff, R² Chlor, R³ 3-Methoxy, R⁴ 4-CH₃SO₂ und R⁵ Wasserstoff bedeuten, und ihre Salze.
- 41. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß R Wasserstoff, R¹ Wasserstoff, R² Chlor, 10 R³ 3-Chlor, R⁴ 4-n-C₃H₂SO₂— und R⁵ Wasserstoff bedeuten, und ihre Salze.
  - 42. Verfahren nach Anspruch 20, dadurch gekennzeichnet, daß R Wasserstoff, R¹ Wasserstoff, R² Chlor, R³ 3-C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>S, R⁴ 4-C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>SO<sub>2</sub> und R⁵ Wasserstoff bedeuten, und ihre Salze.
  - 43. Verfahren nach Anspruch 20, dadurch gekennzeichnet, daß R Wasserstoff, R<sup>1</sup> Wasserstoff, R<sup>2</sup> Chlor, R<sup>3</sup> 3-Methoxy, R<sup>4</sup> 4-CH<sub>3</sub>SO<sub>2</sub> und R<sup>5</sup> Wasserstoff bedeuten, und ihre Salze.
  - 44. Verfahren nach Anspruch 20, dadurch gekennzeichnet, daß R Wasserstoff, R¹ Wasserstoff, R² Chlor, R³ 3-Chlor, R⁴ 4-n-C₃H₂SO₂— und R⁵ Wasserstoff bedeuten, und ihre Salze.
  - 45. Verfahren zur Herstellung einer herbiziden Zubereitung, dadurch gekennzeichnet, daß man die Verbindung nach Anspruch 18 oder eines ihrer Salze und einen inerten Träger dafür vermischt.
- 46. Verfahren zur Kontrolle unerwünschter Vegetation, dadurch gekennzeichnet, daß man auf die Pläche, wo eine Kontrolle erfolgen soll, eine herbizid wirksame Menge der Verbindung nach Anspruch 18 oder eines ihrer Salze und einen inerten Träger dafür anwendet.

#### Revendications pour les Etats contractants: BE GB FR DE NL IT SE CH LI

#### 1. Un dérivé de formule structurelle:

dans laquelle:

25

30

45

50

55

60

R et  $R_1$  représentent un atome d'hydrogène, un radical alkyle en  $C_1$  à  $C_4$ , un groupe  $R^aOC(O)$ — dans lequel  $R^a$  représente un radical alkyle en  $C_1$  à  $C_4$ ;

R<sup>2</sup> représente un atome de chlore, de brome, d'iode ou un radical alkoxy en C<sub>1</sub> à C<sub>4</sub>; et

 $R^3$  et  $R^4$  et  $R^5$  représentent indépendamment: (1) un atome d'hydrogène, (2) un atome d'halogène, (3) un radical alkyle en  $C_1$  à  $C_4$ , (4) un radical alkoxy en  $C_1$  à  $C_4$ , (5) un groupe nitro, (6) un groupe haloalkyle en  $C_1$  à  $C_4$ , (7) le groupe  $R^bSO_n$ — dans lequel le groupe  $R^b$  représente un radical alkyle en  $C_1$  à  $C_4$  et n représente un nombre entier égal à 0, 1 ou 2, (8)

dans lequel  $R^{\circ}$  représente un radical alkyle en  $C_1$  à  $C_4$ , ou (9)  $R^3$  et  $R^4$  peuvent former ensemble une structure annulaire renfermant deux atomes de carbone adjacents dans le noyau du phényle, et leurs sels sous réserve que soient exclus les dérivés de formule structurelle:

dans laquelle:

R et R<sup>1</sup> représentent un atome d'hydrogène ou un radical alkyle en C<sub>1</sub> à C<sub>4</sub>,

R<sup>2</sup> représente un atome de chlore, de brome ou d'iode,

R³ représente un atome d'hydrogène ou d'halogène, et

R<sup>4</sup> représente un atome d'hydrogène, d'halogène, un radical alkyle en C<sub>1</sub> à C<sub>4</sub>, alkoxy en C<sub>1</sub> à C<sub>4</sub>, un groupe nitro ou le radical trifluorométhyle.

2. Les dérivés selon la revendication 1, dans lesquels R et  $R^1$  représentent un atome d'hydrogène ou un radical alkyle en  $C_1$  à  $C_4$ ;  $R^2$  représente un atome de chlore, de brome, d'iode ou un radical alkoxy en  $C_1$  à

10

#### 0 137 963

 $C_4$ ;  $R^3$  et  $R^4$  représentent indépendamment un atome d'hydrogène, d'halogène, un radical alkyle en  $C_1$  à  $C_4$ , alkoxy en  $C_1$  à  $C_4$ , un groupe nitro, un radical haloalkyle en  $C_1$  à  $C_4$ , un groupe  $R^bSO_n$  dans lequel  $R^b$  représente un radical alkyle en  $C_1$  à  $C_4$  et n est un nombre entier égal à 0, 1 ou 2,  $R^cC(O)NH$ — dans lequel  $R^c$  représente un radical alkyle en  $C_1$  à  $C_4$ ;  $R^6$  représente un atome d'hydrogène; et leurs sels.

3. Les dérivés selon la revendication 1, dans lesquels R et R¹ représentent un atome d'hydrogène ou le radical méthyle; R² représente un atome de chlore, de brome ou le radical méthoxy; R³ représente un atome d'hydrogène, de chlore, le groupe diméthylamino ou méthoxy; R⁴ représente un atome d'hydrogène, de chlore, le groupe nitro, R⁵SOn dans lequel R⁵ représente un radical alkyle en C₁ à C₄ et n est égal à 0 ou 2, SO₂N(CH₃)₂ ou CF₃; et R⁵ représente un atome d'hydrogène; et leurs sels.

4. Les dérivés selon la revendication 3, dans lesquels R³ est substitué en position 3, R⁴ est substitué en

position 4 et R<sup>5</sup> est substitué en position 5 ou 6, et leurs sels.

5. Les dérivés selon la revendication 3, dans lesquels R et R¹ représentent un atome d'hydrogène; R² représente un atome de chlore ou le radical méthoxy; R³ représente un atome d'hydrogène, un atome de chlore-3, le radical 3-méthoxy, 3-éthoxy, 3-n-propoxy, 4-méthoxy ou 3-diméthylamino et R⁴ représente un 15 atome de chlore-4, brome-4, 4-CH₂SO₂—, 4C₂H₅SO₂— ou 4-CF₃SO₂; et R⁵ représente un atome d'hydrogène; et leurs sels.

6. Les sels des dérivés selon la revendication 2, dans lesquels R2 représente un atome de chlore.

7. Les sels des dérivés selon la revendication 1, dans lesquels R représente le radical méthyle, R¹ représente un atome de chlore, R³ représente un atome d'hydrogène, R⁴ représente un atome d'hydrogène et R⁵ représente un atome de chlore-6.

8. Les sels des dérivés selon la revendication 1, dans lesquels R représente un atome d'hydrogène, R¹ représente un atome d'hydrogène, R² représente un atome de chlore, R³ représente un atome d'hydrogène, R⁴ représente un atome d'hydrogène, R⁵ représente un atome de chlore-6.

9. Les sels des dérivés selon la revendication 1, dans lesquels R représente un atome d'hydrogène, R¹ représente un atome d'hydrogène, R² représente un atome de chlore, R³ représente un atome d'hydrogène,

R<sup>4</sup> représente un atome de chlore-4 et R<sup>5</sup> représente un atome d'hydrogène.

10. Les sels des dérivés selon la revendication 1, dans lesquels R représente un atome d'hydrogène, R¹ représente un atome d'hydrogène, R² représente un atome de chlore, R³ représente un atome de chlore-3 et R⁴ représente un atome d'hydrogène et R⁵ représente un atome de chlore-6.

11. Les sels des dérivés selon la revendication 1, dans lesquels R représente un atome d'hydrogène, R¹ représente un atome d'hydrogène, R² représente un atome de chlore, R³ représente un atome d'hydrogène, R⁴ représente un atome d'hydrogène et R⁵ représente le radical 5-trifluorométhyle.

12. Les sels des dérivés selon la revendication 1, dans lesquels R représente un atome d'hydrogène, R¹ représente un atome d'hydrogène, R² représente un atome de chlore, R³ représente un atome de chlore-3,

35 R<sup>4</sup> représente un atome de chlore-4 et R<sup>5</sup> représente un atome d'hydrogène.

13. Les sels des dérivés selon la revendication 1, dans lesquels R représente un atome d'hydrogène, R¹ représente un atome d'hydrogène, R² représente un atome de chlore, R³ représente un atome de chlore-3, R⁴ représente le radical 4-méthoxy et R⁵ représente un atome d'hydrogène.

14. Les sels des dérivés selon la revendication 1, dans lesquels R représente un atome d'hydrogène, R¹ représente un atome d'hydrogène, R² représente un atome de chlore, R³ représente un atome d'hydrogène, R⁴ représente un atome de brome-4 et R⁵ représente un atome d'hydrogène.

15. Le dérivé selon la revendication 1, dans lesquels R représente un atome d'hydrogène, R¹ représente un atome d'hydrogène, R² représente un atome de chlore, R³ représente un atome de chlore-3, R⁴ représente nC₃H<sub>7</sub>SO₂— et R⁵ représente un atome d'hydrogène, et leurs sels.

16. Les sels des dérivés selon la revendication 1, dans lesquels R représente un radical isopropyle, R¹ représente un atome d'hydrogène, R² représente un atome de chlore, R³ représente un atome d'hydrogène, R⁴ représente un atome de chlore-4 et R⁵ représente un atome d'hydrogène.

17. Le dérivé selon la revendication 1, dans lesquels R représente le radical isopropyle, R¹ représente un atome d'hydrogène, R² représente un atome de chlore, R³ représente 3-CH₃, R⁴ représente 4-CH₃SO₂ et R⁵ représente un atome d'hydrogène, et leurs sels.

18. Le dérivé selon la revendication 1, dans lesquels R représente un atome d'hydrogène, R¹ représente un atome d'hydrogène, R² représente un atome de chlore, R³ représente un atome d'hydrogène, R⁴ représente 4-CH₃SO₂ et R⁵ représente un atome d'hydrogène, et leurs sels.

19. Les sels selon la revendication 12, respectivement les sels de sodium, d'isopropylamine, de triéthylamine et de potassium.

20. Le procédé de contrôle d'une végétation indésirable consistant à appliquer à la zone que l'on souhaite contrôler une quantité efficace en tant qu'herbicide d'un dérivé de formule:

65

dans laquelle:

10

20

30

65

R et R<sub>1</sub> représentent un atome d'hydrogène, un radical alkyle en C<sub>1</sub> à C<sub>4</sub>, un groupe R°OC(O)— dans lequel Ra représente un radical alkyle en C, à C4;

R<sup>2</sup> représente un atome de chlore, de brome, d'iode ou un radical alkoxy en C<sub>1</sub> à C<sub>4</sub>; et

R³ et R⁴ et R⁵ représentent indépendamment: (1) un atome d'hydrogène, (2) un atome d'halogène, (3) un radical alkyle en  $C_1$  à  $C_4$ , (4) un radical alkoxy en  $C_1$  à  $C_4$ , (5) un groupe nitro, (6) un groupe haloalkyle en C<sub>1</sub> à C<sub>4</sub>, (7) le groupe R<sup>b</sup>SO<sub>n</sub>— dans lequel le groupe R<sup>b</sup> représente un radical alkyle en C<sub>1</sub> à C<sub>4</sub> et n représente un nombre entier égal à 0, 1 ou 2, (8)

dans lequel R° représente un radical alkyle en C<sub>1</sub> à C<sub>4</sub>, ou (9) R³ et R⁴ peuvent former ensemble une structure annulaire renfermant deux atomes de carbone adjacents dans le noyau du phényle, et leurs sels sous réserve que soient exclus les dérivés de formule structurelle:

dans laquelle: 25

R et R1 représentent un atome d'hydrogène ou un radical alkyle en C1 à C4,

R<sup>2</sup> représente un atome de chlore, de brome ou d'iode, R3 représente un atome d'hydrogène ou d'halogène, et

R<sup>4</sup> représente un atome d'hydrogène, d'halogène, un radical alkyle en C<sub>1</sub> à C<sub>4</sub>, alkoxy en C<sub>1</sub> à C<sub>4</sub>, un

groupe nitro ou le radical trifluorométhyle.

21. Le procédé selon la revendication 20, dans lequel R et R¹ représentent un atome d'hydrogène ou un radical alkyle en C<sub>1</sub> à C<sub>4</sub>; R<sup>2</sup> représente un atome de chlore, de brome, d'iode ou un radical alkoxy en C<sub>1</sub> à C<sub>4</sub>; R³ et R⁴ représentent indépendamment un atome d'hydrogène, d'halogène, un radical alkyle en C₁ à C₄, alkoxy en C1 à C4, un groupe nitro, un radical haloalkyle en C1 à C4, un groupe RBSOn dans lequel RB représente un radical alkyle en C<sub>1</sub> à C<sub>4</sub> et n est un nombre entier égal à 0, 1 ou 2, R°C(O)NH— dans lequel R° représente un radical alkyle en C<sub>1</sub> à C<sub>4</sub>; R<sup>5</sup> représente un atome d'hydrogène; et leurs sels.

22. Le procédé selon la revendication 20, dans lequel R et R¹ représentent un atome d'hydrogène ou le radical méthyle; R2 représente un atome de chlore, de brome ou le radical méthoxy; R3 représente un atome d'hydrogène, de chlore, le groupe méthoxy; R4 représente un atome d'hydrogène, de chlore, le groupe nitro, RbSOn dans lequel Rb représente un radical alkyle en C1 à C4 et n est égal à 0 ou 2, SO2N(CH3)2 ou CF<sub>3</sub>; et R<sup>5</sup> représente un atome d'hydrogène; et leurs sels.

23. Le procédé selon la revendication 22, dans lequel R3 est substitué en position 3, R4 est substitué en

position 4 et R<sup>5</sup> est substitué en position 5 ou 6, et leurs sels.

24. Le procédé selon la revendication 22, dans lequel R et R1 représentent un atome d'hydrogène; R2 représente un atome de chlore ou le radical méthoxy; R3 représente un atome d'hydrogène, un atome de chlore-3, le radical 3-méthoxy, 3-éthoxy, 3-n-propoxy, 4-méthoxy ou 3-diméthylamino; R4 représente un atome de chlore-4, brome-4, 4-CH<sub>2</sub>SO<sub>2</sub>--, 4C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>SO<sub>2</sub>-- ou 4-CF<sub>3</sub>SO<sub>2</sub>; et R<sup>5</sup> représente un atome d'hydrogène: et leurs sels.

25. Le procédé selon la revendication 24, dans lequel R2 représente un atome de chlore, et leurs sels.

26. Le procédé selon la revendication 20, dans lequel on applique un sel d'un dérivé dans lequel R représente le radical méthyle, R1 représente le radical méthyle, R2 représente un atome de chlore, R3 représente un atome d'hydrogène, R4 représente un atome d'hydrogène et R5 représente un atome de chlore-6.

27. Le procédé selon la revendication 20, dans lequel on applique un sel d'un dérivé dans lequel R représente un atome d'hydrogène, R¹ représente un atome d'hydrogène, R² représente un atome de chlore, R<sup>3</sup> représente un atome d'hydrogène, R<sup>4</sup> représente un atome d'hydrogène, R<sup>5</sup> représente un atome de

28. Le procédé selon la revendication 20, dans lequel on applique un sel d'un dérivé dans lequel R représente un atome d'hydrogène, R1 représente un atome d'hydrogène, R2 représente un atome de chlore, R3 représente un atome d'hydrogène, R4 représente un atome de chlore-4 et R5 représente un atome

29. Le procédé selon la revendication 20, dans lequel on applique un sel d'un dérivé dans lequel R représente un atome d'hydrogène, R1 représente un atome d'hydrogène, R2 représente un atome de chlore, R3 représente un atome de chlore-3 et R4 représente un atome d'hydrogène et R5 représente un atome de chlore-6.

30. Le procédé selon la revendication 20, dans lequel on applique un sel d'un dérivé dans lequel R

représente un atome d'hydrogène, R¹ représente un atome d'hydrogène, R² représente un atome de chlore, R³ représente un atome d'hydrogène, R⁴ représente un atome d'hydrogène et R⁵ représente le radical 5-trifluorométhyle.

31. Le procédé selon la revendication 20, dans lequel on applique un sel d'un dérivé dans lequel R représente un atome d'hydrogène, R¹ représente un atome d'hydrogène, R² représente un atome de chlore, R³ représente un atome de chlore-3, R⁴ représente un atome de chlore-4 et R⁵ représente un atome d'hydrogène.

32. Le procédé selon la revendication 20, dans lequel on applique un sel d'un dérivé dans lequel R représente un atome d'hydrogène, R¹ représente un atome d'hydrogène, R² représente un atome de chlore, R³ représente un atome de chlore-3, R⁴ représente le radical 4-méthoxy et R⁵ représente un atome

d'hydrogène.

33. Le procédé selon la revendication 20, dans lequel on applique un sel d'un dérivé dans lequel R représente un atome d'hydrogène, R¹ représente un atome d'hydrogène, R² représente un atome de chlore, R³ représente un atome d'hydrogène, R⁴ représente un atome de brome-4 et R⁵ représente un atome d'hydrogène.

34. Le procédé selon la revendication 20, dans lequel R représente un atome d'hydrogène, R¹ représente un atome d'hydrogène, R² représente un atome de chlore, R³ représente un atome de chlore-3,

R⁴ représente nC<sub>3</sub>H<sub>7</sub>SO<sub>2</sub>— et R⁵ représente un atome d'hydrogène, et leurs sels.

35. Le procédé selon la revendication 20, dans lequel R représente un radical isopropyle, R¹ représente un atome d'hydrogène, R² représente un atome de chlore, R³ représente un atome d'hydrogène, R⁴ représente un atome de chlore-4 et R⁵ représente un atome d'hydrogène, et leurs sels.

36. Le procédé selon la revendication 20, dans lequel R représente un atome d'hydrogène, R¹ représente un atome d'hydrogène, R² représente un atome de chlore, R³ représente 3-CH₃O, R⁴ représente 4-CH₃SO₂, un atome de chlore, et R⁵ représente un atome d'hydrogène, et leurs sels.

37. Le procédé selon la revendication 20, dans lequel R représente un atome d'hydrogène, R¹ représente un atome d'hydrogène, R² représente un atome de chlore, R³ représente un atome d'hydrogène, R⁴ représente 4-CH₃SO₂ et R⁵ représente un atome d'hydrogène, et leurs sels.

38. Le procédé selon la revendication 20, dans lequel les sels sont les sels de sodium,

d'isopropylamine, de triéthylamine et de potassium.

39. Le dérivé selon la revendication 1, dans lequel R représente un atome d'hydrogène, R¹ représente un atome d'hydrogène, R² représente un atome de chlore, R³ représente 3-C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>S, R⁴ représente 4-C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>SO<sub>2</sub> et R⁵ représente un atome d'hydrogène, et leurs sels.

40. Le dérivé selon la revendication 1, dans lequel R représente un atome d'hydrogène, R¹ représente un atome d'hydrogène, R² représente un atome de chlore, R³ représente le radical 3-méthoxy, R⁴

représente 4-CH<sub>3</sub>SO<sub>2</sub> et R<sup>5</sup> représente un atome d'hydrogène, et leurs sels.

41. Le dérivé selon la revendication 1, dans lequel R représente un atome d'hydrogène, R¹ représente un atome d'hydrogène, R² représente un atome de chlore, R³ représente un atome de chlore-3, R⁴ représente 4-n-C₃H₁SO₂— et R⁵ représente un atome d'hydrogène, et leurs sels.

42. Le procédé selon la revendication 20, dans lequel R représente un atome d'hydrogène, R¹ représente un atome d'hydrogène, R² représente un atome de chlore, R³ représente 3-C₂H₅S, R⁴ représente

4-C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>SO<sub>2</sub> et R<sup>5</sup> représente un atome d'hydrogène, et leurs sels.

43. Le procédé selon la revendication 20, dans lequel R représente un atome d'hydrogène, R¹ représente un atome d'hydrogène, R² représente un atome de chlore, R³ représente le radical 3-méthoxy, R⁴ représente 4-CH<sub>3</sub>SO<sub>2</sub> et R⁵ représente un atome d'hydrogène, et leurs sels.

44. Le procédé selon la revendication 20, dans lequel R représente un atome d'hydrogène, R¹ représente un atome d'hydrogène, R² représente un atome de chlore, R³ représente un atome de chlore-3, R⁴ représente 4-n-C<sub>3</sub>H<sub>7</sub>SO<sub>2</sub>— et R⁵ représente un atome d'hydrogène, et leurs sels.

45. Une composition herbicide comprenant le dérivé de la revendication 18 ou l'un de ses sels et un support inerte de ceux-ci.

46. Le procédé de contrôle d'une végétation indésirable, consistant à appliquer à la zone que l'on désire contrôler une quantité efficace en tant qu'herbicide du dérivé selon la revendication 8 ou un de ses sels et un support inerte vis-à-vis de cet herbicide.

#### Revendications pour l'Etat contractant: AT

1. Un procédé de préparation de dérivés de formule structurelle:

65

55

dans laquelle:

10

20

25

35

40

45

R et  $R_1$  représentent un atome d'hydrogène, un radical alkyle en  $C_1$  à  $C_4$ , un groupe  $R^aOC(0)$ — dans lequel  $R^a$  représente un radical alkyle en  $C_1$  à  $C_4$ ;

R2 représente un atome de chlore, de brome, d'iode ou un radical alkoxy en C1 à C4; et

 $R^3$  et  $R^4$  et  $R^5$  représentent indépendamment: (1) un atome d'hydrogène, (2) un atome d'halogène, (3) un radical alkyle en  $C_1$  à  $C_4$ , (4) un radical alkoxy en  $C_1$  à  $C_4$ , (5) un groupe nitro, (6) un groupe haloalkyle en  $C_1$  à  $C_4$ , (7) le groupe  $R^bSO_n$ — dans lequel le groupe  $R^b$  représente un radical alkyle en  $C_1$  à  $C_4$  et n représente un nombre entier égal à 0, 1 ou 2, (8)

O || R°CNH---

dans lequel R° représente un radical alkyle en C<sub>1</sub> à C<sub>4</sub>, ou (9) R³ et R⁴ peuvent former ensemble une structure annulaire renfermant deux atomes de carbone adjacents dans le noyau du phényle, et leurs sels sous réserve que soient exclus les dérivés de formule structurelle:

R R<sup>2</sup>

dans laquelle:

R et R1 représentent un atome d'hydrogène ou un radical alkyle en C1 à C4,

R<sup>2</sup> représente un atome de chlore, de brome ou d'iode,

R3 représente un atome d'hydrogène ou d'halogène, et

R<sup>4</sup> représente un atome d'hydrogène, d'halogène, un radical alkyle en C<sub>1</sub> à C<sub>4</sub>, alkoxy en C<sub>1</sub> à C<sub>4</sub>, un groupe nitro ou le radical trifluorométhyle,

consistant à faire réagir une dione substituée de formule générale II:

R

avec un cyanure de benzoyle substitué de formule générale III:

NC-C R2 R3

et à élaborer le produit de la réaction par des techniques classiques.

2. Le procédé selon la revendication 1, dans lequel R et  $R^1$  représentent un atome d'hydrogène ou un radical alkyle en  $C_1$  à  $C_4$ ;  $R^2$  représente un atome de chlore, de brome, d'iode ou un radical alkoxy en  $C_1$  à  $C_4$ ;  $R^3$  et  $R^4$  représentent indépendamment un atome d'hydrogène, d'halogène, un radical alkyle en  $C_1$  à  $C_4$ , alkoxy en  $C_1$  à  $C_4$ , un groupe nitro, un radical haloalkyle en  $C_1$  à  $C_4$ , un groupe  $C_1$  à  $C_4$  et n est un nombre entier égal à 0, 1 ou 2,  $C_4$ 0)  $C_4$ 0 dans lequel  $C_4$ 0 représente un radical alkyle en  $C_1$ 3  $C_4$ 4.  $C_4$ 6 représente un atome d'hydrogène; et leurs sels.

3. Le procédé selon la revendication 1, dans lequel R et R¹ représentent un atome d'hydrogène ou le radical méthyle; R² représente un atome de chlore, de brome ou le radical méthoxy; R³ représente un atome d'hydrogène, de chlore, le groupe diméthylamino ou méthoxy; R⁴ représente un atome d'hydrogène, de chlore, le groupe nitro, R⁵SOn dans lequel R⁵ représente un radical alkyle en C₁ à C₄ et n est égal à 0 ou 2, SO₂N(CH₃)₂ ou CF₃; et R⁵ représente un atome d'hydrogène; et leurs sels.

4. Le procédé selon la revendication 3, dans lequel R³ est substitué en position 3, R⁴ est substitué en position 4 et R⁵ est substitué en position 5 ou 6, et leurs sels.

5. Le procédé selon la revendication 3, dans lequel R et R¹ représentent un atome d'hydrogène; R² représente un atome de chlore ou le radical méthoxy; R³ représente un atome d'hydrogène, un atome de chlore-3, le radical 3-méthoxy, 3-éthoxy, 3-n-propoxy, 4-méthoxy ou 3-diméthylamino et R⁴ représente un atome de chlore-4, brome-4, 4-CH₂SO₂—, 4C₂H₅SO₂— ou 4-CF₃SO₂; et R⁵ représente un atome d'hydrogène; et leurs sels.

 Le procédé selon la revendication 2 dans lequel on prépare des sels des dérivés dans lequel R² représente un atome de chlore.

7. Le procédé selon la revendication 1 dans lequel on prépare des sels des dérivés dans lequel R représente le radical méthyle, R¹ représente le radical méthyle, R² représente un atome de chlore, R³ représente un atome d'hydrogène, R⁴ représente un atome d'hydrogène et R⁵ représente un atome de chlore-6.

8. Le procédé selon la revendication 1, dans lequel on prépare des sels des dérivés dans lequel R représente un atome d'hydrogène, R¹ représente un atome d'hydrogène, R² représente un atome de chlore, R³ représente un atome d'hydrogène, R⁴ représente un atome d'hydrogène, R⁵ représente un atome de chlore-6.

9. Le procédé selon la revendication 1, dans lequel on prépare des sels des dérivés dans lequel R représente un atome d'hydrogène, R¹ représente un atome d'hydrogène, R² représente un atome de chlore, R³ représente un atome d'hydrogène, R⁴ représente un atome de chlore-4 et R⁵ représente un atome d'hydrogène.

10. Le procédé selon la revendication 1, dans lequel on prépare des sels des dérivés dans lequel R représente un atome d'hydrogène, R¹ représente un atome d'hydrogène, R² représente un atome de chlore, R³ représente un atome de chlore-3 et R⁴ représente un atome d'hydrogène et R⁵ représente un atome de chlore-6.

11. Le procédé selon la revendication 1, dans lequel on prépare des sels des dérivés dans lequel R représente un atome d'hydrogène, R¹ représente un atome d'hydrogène, R² représente un atome de chlore, R³ représente un atome d'hydrogène, R⁴ représente un atome d'hydrogène et R⁵ représente le radical 5-trifluorométhyle.

12. Le procédé selon la revendication 1, dans lequel on prépare des sels des dérivés dans lequel R représente un atome d'hydrogène, R¹ représente un atome d'hydrogène, R² représente un atome de chlore, R³ représente un atome de chlore-3, R⁴ représente un atome de chlore-4 et R⁵ représente un atome d'hydrogène.

13. Le procédé selon la revendication 1, dans lequel on prépare des sels des dérivés dans lequel R représente un atome d'hydrogène, R¹ représente un atome de chlore, R³ représente un atome de chlore-3, R⁴ représente le radical 4-méthoxy et R⁵ représente un atome d'hydrogène.

14. Le procédé selon la revendication 1, dans lequel on prépare des sels des dérivés dans lequel R représente un atome d'hydrogène, R¹ représente un atome d'hydrogène, R² représente un atome de chlore, R³ représente un atome d'hydrogène, R⁴ représente un atome de brome-4 et R⁵ représente un atome d'hydrogène.

15. Le procédé selon la revendication 1, dans lequel R représente un atome d'hydrogène,  $R^1$  représente un atome d'hydrogène,  $R^2$  représente un atome de chlore,  $R^3$  représente un atome de chlore-3,  $R^4$  représente  $nC_3H_7SO_2$ — et  $R^5$  représente un atome d'hydrogène, et leurs sels.

16. Le procédé selon la revendication 1, dans lequel on prépare des sels des dérivés dans lequel R représente un radical isopropyle, R¹ représente un atome d'hydrogène, R² représente un atome de chlore, R³ représente un atome d'hydrogène, R⁴ représente un atome de chlore-4 et R⁵ représente un atome d'hydrogène.

17. Le procédé selon la revendication 1, dans lequel R représente le radical isopropyle, R¹ représente un atome d'hydrogène, R² représente un atome de chlore, R³ représente 3-CH₃, R⁴ représente 4-CH₃SO₂ et R⁵ représente un atome d'hydrogène, et leurs sels.

18. Le procédé selon la revendication 1, dans lequel R représente un atome d'hydrogène, R¹ représente un atome d'hydrogène, R² représente un atome de chlore, R³ représente un atome d'hydrogène, R⁴ représente 4-CH₃SO₂ et R⁵ représente un atome d'hydrogène, et leurs sels.

19. Le procédé selon la revendication 12, dans lequel on prépare des sels de sodium, d'isopropylamine, de triéthylamine et de potassium.

20. Le procédé de contrôle d'une végétation indésirable consistant à appliquer à la zone que l'on souhaite contrôler une quantité efficace en tant qu'herbicide d'un dérivé de formule:

60 dans laquelle:

55

R et R<sub>1</sub> représentent un atome d'hydrogène, un radical alkyle en C<sub>1</sub> à C<sub>4</sub>, un groupe RªOC(O)— dans lequel Rª représente un radical alkyle en C<sub>1</sub> à C<sub>4</sub>;

 $R^2$  représente un atome de chlore, de brome, d'iode ou un radical alkoxy en  $C_1$  à  $C_4$ ; et

 $R^3$  et  $R^4$  et  $R^5$  représentent indépendamment: (1) un atome d'hydrogène, (2) un atome d'halogène, (3) un radical alkyle en  $C_1$  à  $C_4$ , (4) un radical alkoxy en  $C_1$  à  $C_4$ , (5) un groupe nitro, (6) un groupe haloalkyle en

#### 0:137 963

 $C_1$  à  $C_4$ , (7) le groupe  $R^bSO_n$ — dans lequel le groupe  $R^b$  représente un radical alkyle en  $C_1$  à  $C_4$  et n représente un nombre entier égal à 0, 1 ou 2, (8)



dans lequel R° représente un radical alkyle en C<sub>1</sub> à C<sub>4</sub>, ou (9) R³ et R⁴ peuvent former ensemble une structure annulaire renfermant deux atomes de carbone adjacents dans le noyau du phényle, et leurs sels sous réserve que soient exclus les dérivés de formule structurelle:

dans laquelle:

5

15

20

R et R1 représentent un atome d'hydrogène ou un radical alkyle en C1 à C4

R<sup>2</sup> représente un atome de chlore, de brome ou d'lode,

R3 représente un atome d'hydrogène ou d'halogène, et

 $R^4$  représente un atome d'hydrogène, d'halogène, un radical alkyle en  $C_1$  à  $C_4$ , alkoxy en  $C_1$  à  $C_4$ , un groupe nitro ou le radical trifluorométhyle.

21. Le procédé selon la revendication 20, dans lequel R et R¹ représentent un atome d'hydrogène ou un radical alkyle en C₁ à C₄; R² représente un atome de chlore, de brome, d'iode ou un radical alkoxy en C₁ à C₄; R³ et R⁴ représentent indépendamment un atome d'hydrogène, d'halogène, un radical alkyle en C₁ à C₄, alkoxy en C₁ à C₄, un groupe nitro, un radical haloalkyle en C₁ à C₄, un groupe R⁵SOn dans lequel R⁵ représente un radical alkyle en C₁ à C₄ et n est un nombre entier égal à 0, 1 ou 2, R°C(O)NH— dans lequel R° représente un radical alkyle en C₁ à C₄; R⁵ représente un atome d'hydrogène; et leurs sels.

22. Le procédé selon la revendication 20, dans lequel R et R¹ représentent un atome d'hydrogène ou le radical méthyle; R² représente un atome de chlore, de brome ou le radical méthoxy; R³ représente un atome d'hydrogène, de chlore, le groupe méthoxy; R⁴ représente un atome d'hydrogène, de chlore, le groupe nitro, R⁵SO<sub>n</sub> dans lequel R⁵ représente un radical alkyle en C₁ à C₄ et n est égal à 0 ou 2, SO₂N(CH₃)₂ ou CF₃; et R⁵ représente un atome d'hydrogène; et leurs sels.

23. Le procédé selon la revendication 22, dans lequel R³ est substitué en position 3, R⁴ est substitué en position 4 et R⁵ est substitué en position 5 ou 6, et leurs sels.

24. Le procédé selon la revendication 22, dans lequel R et R¹ représentent un atome d'hydrogène; R² représente un atome de chlore ou le radical méthoxy; R³ représente un atome d'hydrogène, un atome de chlore-3, le radical 3-méthoxy, 3-éthoxy, 3-n-propoxy, 4-méthoxy ou 3-diméthylamino; R⁴ représente un atome de chlore-4, brome-4, 4-CH₂SO₂—, 4C₂H₅SO₂— ou 4-CF₃SO₂; et R⁵ représente un atome d'hydrogène; et leurs sels.

25. Le procédé selon la revendication 24, dans lequel R² représente un atome de chlore, et leurs sels.

26. Le procédé selon la revendication 20, dans lequel on applique un sel d'un dérivé dans lequel R représente le radical méthyle, R¹ représente le radical méthyle, R² représente un atome de chlore, R³ représente un atome d'hydrogène, R⁴ représente un atome d'hydrogène et R⁵ représente un atome de chlore-6.

27. Le procédé selon la revendication 20, dans lequel on applique un sel d'un dérivé dans lequel R représente un atome d'hydrogène, R¹ représente un atome d'hydrogène, R² représente un atome de chlore, 50 R³ représente un atome d'hydrogène, R⁴ représente un atome d'hydrogène, R⁵ représente un atome de chlore-6.

28. Le procédé selon la revendication 20, dans lequel on applique un sel d'un dérivé dans lequel R représente un atome d'hydrogène, R¹ représente un atome d'hydrogène, R² représente un atome de chlore, R³ représente un atome d'hydrogène, R⁴ représente un atome de chlore-4 et R⁵ représente un atome 55 d'hydrogène.

29. Le procédé selon la revendication 20, dans lequel on applique un sel d'un dérivé dans lequel R représente un atome d'hydrogène, R¹ représente un atome d'hydrogène, R² représente un atome de chlore, R³ représente un atome de chlore, R³ représente un atome de chlore-3 et R⁴ représente un atome d'hydrogène et R⁵ représente un atome de chlore-6.

30. Le procédé selon la revendication 20, dans lequel on applique un sel d'un dérivé dans lequel R représente un atome d'hydrogène, R¹ représente un atome d'hydrogène, R² représente un atome de chlore, R³ représente un atome d'hydrogène, R⁴ représente un atome d'hydrogène et R⁵ représente le radical 5-trifluorométhyle.

31. Le procédé selon la revendication 20, dans lequel on applique un sel d'un dérivé dans lequel R 55 représente un atome d'hydrogène, R¹ représente un atome d'hydrogène, R² représente un atome de chlore,

R³ représente un atome de chlore-3, R⁴ représente un atome de chlore-4 et R⁵ représente un atome d'hydrogène.

32. Le procédé selon la revendication 20, dans lequel on applique un sel d'un dérivé dans lequel R représente un atome d'hydrogène, R¹ représente un atome d'hydrogène, R² représente un atome de chlore, R³ représente un atome de chlore-3, R⁴ représente le radical 4-méthoxy et R⁵ représente un atome d'hydrogène.

33. Le procédé selon la revendication 20, dans lequel on applique un sel d'un dérivé dans lequel R représente un atome d'hydrogène, R¹ représente un atome d'hydrogène, R² représente un atome de chlore, R³ représente un atome d'hydrogène, R⁴ représente un atome de brome-4 et R⁵ représente un atome d'hydrogène.

34. Le procédé selon la revendication 20, dans lequel R représente un atome d'hydrogène, R¹ représente un atome d'hydrogène, R² représente un atome de chlore, R³ représente un atome de chlore-3, R⁴ représente nC<sub>2</sub>H<sub>7</sub>SO<sub>2</sub>— et R⁵ représente un atome d'hydrogène, et leurs sels.

35. Le procédé selon la revendication 20, dans lequel R représente un radical isopropyle, R¹ représente 15 un atome d'hydrogène, R² représente un atome de chlore, R³ représente un atome d'hydrogène, R⁴ représente un atome de chlore-4 et R⁵ représente un atome d'hydrogène, et leurs sels.

36. Le procédé selon la revendication 20, dans lequel R représente un atome d'hydrogène, R¹ représente un atome d'hydrogène, R² représente un atome de chlore, R³ représente 3-CH₃O, R⁴ représente 4-CH₃SO₂, un atome de chlore, et R⁵ représente un atome d'hydrogène, et leurs sels.

37. Le procédé selon la revendication 20, dans lequel R représente un atome d'hydrogène, R¹ représente un atome d'hydrogène, R² représente un atome de chlore, R³ représente un atome d'hydrogène, R⁴ représente 4-CH₃SO₂ et R⁵ représente un atome d'hydrogène, et leurs sels.

38. Le procédé selon la revendication 20, dans lequel les sels sont les sels de sodium, d'isopropylamine, de triéthylamine et de potassium.

39. Le dérivé selon la revendication 1, dans lequel R représente un atome d'hydrogène, R¹ représente un atome d'hydrogène, R² représente un atome de chlore, R³ représente 3-C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>S, R⁴ représente 4-C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>SO<sub>2</sub> et R⁵ représente un atome d'hydrogène, et leurs sels.

40. Le dérivé selon la revendication 1, dans lequel R représente un atome d'hydrogène, R¹ représente un atome d'hydrogène, R² représente un atome de chlore, R³ représente le radical 3-méthoxy, R⁴ représente 4-CH<sub>3</sub>SO<sub>2</sub> et R⁵ représente un atome d'hydrogène, et leurs sels.

41. Le dérivé selon la revendication 1, dans lequel R représente un atome d'hydrogène, R¹ représente un atome d'hydrogène, R² représente un atome de chlore, R³ représente un atome de chlore-3, R⁴ représente 4-n-C₃H₂SO₂— et R⁵ représente un atome d'hydrogène, et leurs sels.

42. Le procédé selon la revendication 20, dans lequel R représente un atome d'hydrogène, R¹ représente un atome d'hydrogène, R² représente un atome de chlore, R³ représente 3-C<sub>2</sub>H<sub>6</sub>S, R⁴ représente 4-C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>SO<sub>2</sub> et R⁵ représente un atome d'hydrogène, et leurs sels.

43. Le procédé selon la revendication 20, dans lequel R représente un atome d'hydrogène, R¹ représente un atome d'hydrogène, R² représente un atome de chlore, R³ représente le radical 3-méthoxy, R⁴ représente 4-CH<sub>3</sub>SO<sub>2</sub> et R⁵ représente un atome d'hydrogène, et leurs sels.

44. Le procédé selon la revendication 20, dans lequel R représente un atome d'hydrogène, R¹ représente un atome d'hydrogène, R² représente un atome de chlore, R³ représente un atome de chlore-3, R⁴ représente 4-n-C₃H₂SO₂— et R⁵ représente un atome d'hydrogène, et leurs sels.

45. Un procédé de préparation d'une composition herbicide consistant à mélanger le dérivé selon la revendication 18 ou l'un de ses sels avec un support inerte de ceux-ci.

46. Le procédé de contrôle d'une végétation indésirable, consistant à appliquer à la zone que l'on désire contrôler une quantité efficace en tant qu'herbicide du dérivé selon la revendication 18 ou l'un de ses sels et un support inerte de ceux-ci.

50

55